

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)(51) Internationale Patentklassifikation⁴ :

C01B 3/38

A2

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 88/ 01983

(43) Internationales
Veröffentlichungsdatum:

24. März 1988 (24.03.88)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP87/00519

(22) Internationales Anmeldedatum:
14. September 1987 (14.09.87)(31) Prioritätsaktenzeichen: P 36 31 366.1
P 36 31 365.3(32) Prioritätsdaten: 15. September 1986 (15.09.86)
15. September 1986 (15.09.86)

(33) Prioritätsland: DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): L. &
C. STEINMÜLLER GMBH [DE/DE]; Postfach 10 08
55, D-5270 Gummersbach 1 (DE).(72) Erfinder; und
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US) : PANKNIN, Walter
[DE/DE]; Zeisigpfad 7, D-5270 Gummersbach 1
(DE).(74) Anwalt: CARSTENS, Wilhelm; L. & C. Steinmüller
GmbH, Postfach 10 08 55, D-5270 Gummersbach 1
(DE).(81) Bestimmungsstaaten: AT (europäisches Patent), BE (eu-
ropäisches Patent), CH (europäisches Patent), DE
(europäisches Patent), FR (europäisches Patent), GB
(europäisches Patent), IT (europäisches Patent), JP,
LU (europäisches Patent), NL (europäisches Patent),
NO, SE (europäisches Patent), SU, US.

Veröffentlicht

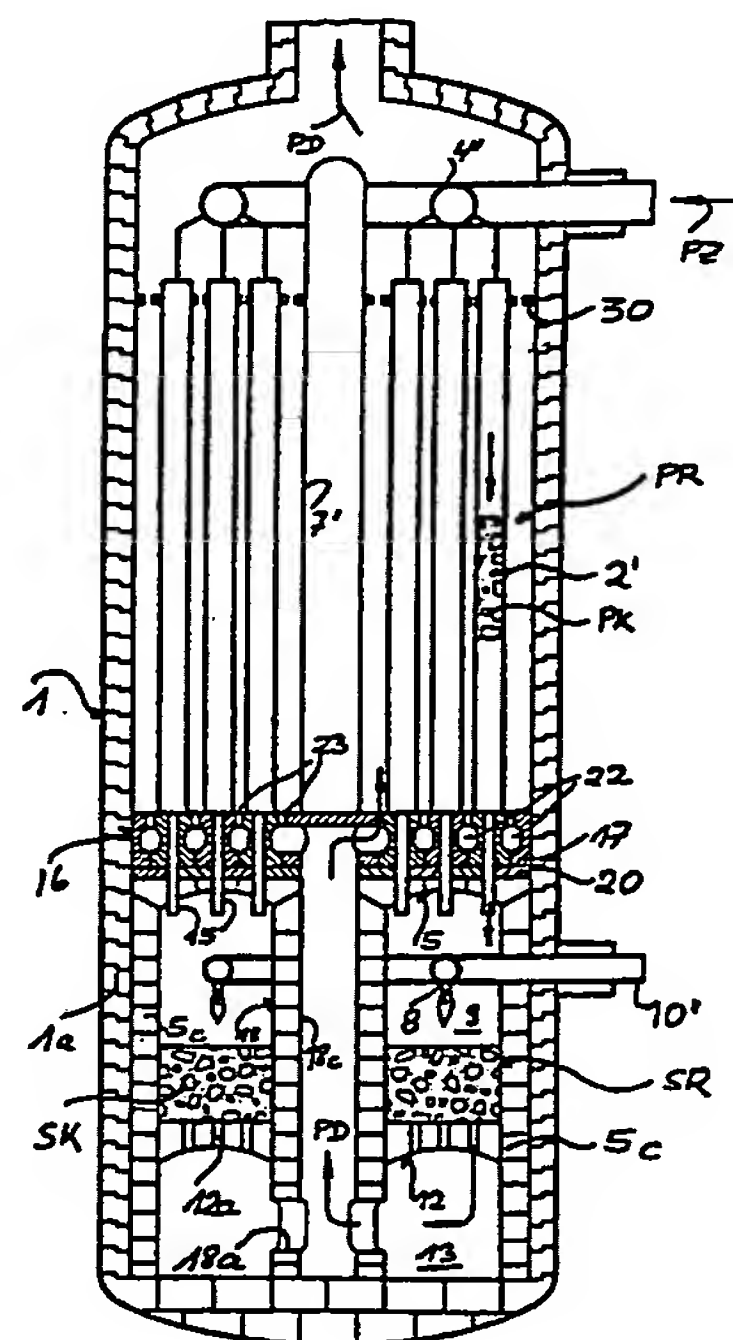
Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu
veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.

(54) Title: REFORMER FOR CATALYTIC CRACKING OF GASEOUS HYDROCARBONS

(54) Bezeichnung: REFORMER FÜR DIE KATALYTISCHE SPALTUNG GASFÖRMIGER KOHLENWASSER-
STOFFE

(57) Abstract

A reformer for catalytic cracking of gaseous hydrocarbons, in particular in the presence of water vapour, for obtaining a reconstituted gas, comprises a pressurized tank (1), a plurality of cracking tubes (2) parallel to one another in said tank, and a catalyst (PK). The heat convected through the tube walls and originating from a burning heating gas is transferred to the processing gas passing through the catalyst. In order to facilitate, on the one hand, the replacement of the catalyst, the heating gas (HG) is conveyed through the cracking tubes (2') and the catalyst (PK) is introduced into the pressurized tank (1) between the cracking tubes in the form of a loose material, and, on the other hand, in order to improve the support system for the cracking tubes, the tubes (2') are jointly supported with the catalyst (PK) vertically on a vault (5) made of ceramic material, provided with gas passages (5b) and defining a gas-collection space (9) for the reconstituted gas (PD). During use of the reformer as a primary reformer in a primary and secondary reformer installation, it is envisaged that in order to simplify said installation and improve thermal economy, the primary reformer (PR) and secondary reformer (SR) are arranged in a single pressurized tank (19) and that the reconstituted gas (PD) from the secondary reformer (SR) is fed to the primary reformer for the purpose of convection heating of the latter.



BEST AVAILABLE COPY

(57) Zusammenfassung Bei einem Reformer für die katalytische Spaltung gasförmiger Kohlenwasserstoffe insb. mit Wasserdampf zu einem Produktgas mit einem Druckbehälter (1), einer Vielzahl von in dem Behälter parallel zueinander angeordneten Spaltrohren (2) und einem Katalysator (PK), wobei durch die Rohrwände hindurch konvektiv Wärme von einem heißen Heizgas auf das den Katalysator durchströmende Prozeßgas übertragbar ist, ist zum einen zur Erleichterung des Katalysatorwechsels vorgesehen, daß das Heizgas (HG) durch die Spaltrohre (2') geführt ist und der Katalysator (PK) in dem Druckbehälter (1) zwischen die Spaltrohre als Schüttung eingebracht ist, und zum anderen zur Verbesserung der Abstützung der Spaltrohre vorgesehen, daß die Rohre (2') stehend auf einem aus einem keramischen Werkstoff aufgebauten und einen Gassammelraum (9) für das Produktgas (PD) begrenzenden und mit Gasdurchlässen (5b) versehenen Deckengewölbe (5) zusammen mit dem Katalysator (PK) abgestützt sind. Bei Verwendung des Reformers als Primärreformer in einer Primär-Sekundärreformer-Anlage ist zur Vereinfachung der Anlage und zur Verbesserung des Wärmehaushalts vorgesehen, daß der Primärreformer (PR) und der Sekundärreformer (SR) in einem einzigen Druckbehälter (19) angeordnet sind und daß das den Sekundärreformer (SR) verlassende Produktgas (PD) dem Primärreformer (PR) zur konvektiven Heizung des Primärreformers zuführbar ist.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Code, die zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AT	Österreich	FR	Frankreich	ML	Mali
AU	Australien	GA	Gabun	MR	Mauritanien
BB	Barbados	GB	Vereinigtes Königreich	MW	Malawi
BE	Belgien	HU	Ungarn	NL	Niederlande
BG	Bulgarien	IT	Italien	NO	Norwegen
BR	Brasilien	JP	Japan	RO	Rumänien
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SD	Sudan
CG	Kongo	KR	Republik Korea	SE	Schweden
CH	Schweiz	LI	Liechtenstein	SN	Senegal
CM	Kamerun	LK	Sri Lanka	SU	Soviet Union
DE	Deutschland, Bundesrepublik	LU	Luxemburg	TD	Tschad
DK	Dänemark	MC	Monaco	TG	Togo
FI	Finnland	MG	Madagaskar	US	Vereinigte Staaten von Amerika

Beschreibung

Reformer für die katalytische Spaltung gasförmiger Kohlenwasserstoffe mit Wasserdampf und eine Primär- und einen Sekundärreformer aufweisende Anlage für diesen Zweck

Die Erfindung betrifft zunächst einen Reformer für die katalytische Spaltung gasförmiger Kohlenwasserstoffe, insb. mit Wasserdampf zu einem Produktgas mit einem Druckbehälter, einer Vielzahl von in dem Behälter parallel zueinander angeordneten Spaltrohren und einem Katalysator, wobei durch die Rohrwände hindurch konvektiv Wärme von einem heißen Heizgas auf das den Katalysator durchströmende Prozeßgas übertragbar ist.

Aus dem Prospekt der Anmelderin "Process Engineering - Steam Reformer and Intermediate Heat Exchanger for PNP or HTR-Module Concept", S. 2 ist ein solcher Reformer bekannt, bei dem das Katalysatormaterial in die im Druckbehälter aufgehängt abgestützten Spaltrohre eingefüllt ist.

Bei einem Katalysatorwechsel müssen die Spaltrohre einzeln gezogen werden. Im übrigen neigt das hängend abgestützte Rohrbündel zu Schwingungen und die Ausnutzung der mit dem Heizgas zugeführten Wärme ist nicht optimal.

Die hängende Abstützung der Spaltrohre in einer Tragplatte führt zu relativ kleinen Reformereinheiten oder zu sehr schweren Tragplatten infolge der Zugbelastungen bei hohen Betriebstemperaturen.

Es ist zunächst die Aufgabe der vorliegenden Erfindung einen Reformer anzugeben, bei dem der Katalysatorwechsel erleichtert und zugleich die Stabilität des Rohrbündels verbessert wird.

Diese Aufgabe wird dadurch gelöst, daß das Heizgas durch die Spaltrohre geführt ist und der Katalysator in dem Druckbehälter zwischen die Spaltrohre als Schüttung eingebracht ist.

Bei Katalysatorwechsel brauchen nicht die Rohre gezogen zu werden, sondern die Katalysatorschüttung kann in geeigneter Weise, z. B. durch Absaugen aus dem gesamten Volumen entfernt werden. Durch das Eintauchen der Rohre in die Schüttung werden diese stabilisiert.

Diese Teilaufgabe wird auch dann gelöst, wenn die Spaltrohre und der Katalysator hängend in dem Behälter abgestützt sind.

Eine weitere Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es jedoch auch, die Abstützung der Spaltrohre im Druckbehälter so zu verbessern, daß relativ große Reformereinheiten gebaut werden können.

Diese Aufgabe wird dadurch gelöst, daß die Rohre stehend auf einem aus einem keramischen Werkstoff aufgebauten und einem Gassammelraum für das Produktgas begrenzenden mit Gasdurchlässen versehenen Deckengewölbe zusammen mit dem Katalysator abgestützt sind.

Bei Verwendung eines Deckengewölbes aus keramischen Werkstoff, das die Spaltrohre und den Katalysator abstützt, ist die Lastabtragung dieser Gewichte auf den Druckbehälter außerordentlich günstig. Zusätzlich werden Differenzdehnungen weitgehendst reduziert. Das Deckengewölbe kann freitragend sein oder mittig oder mehrfach abgestützt sein.

Sowohl bei einer hängenden als auch bei einer abgestützten Konstruktion der Spaltrohre ist es möglich, daß der Katalysator in an sich bekannter Weise in den Spaltrohren angeordnet ist und diese von dem Heizgas umströmt sind.

Bei den erfindungsgemäßen Reformern können die Spaltrohre in an sich bekannter Weise als getrennte Einzelrohre ausgebildet sein; es könnte jedoch von Vorteil sein, wenn die Spaltrohre zu zur Behälterachse konzentrischen Flossenwänden zusammengefasst sind, oder als spiralförmig gewickelte gegebenenfalls miteinander verschweißte Flossenbretter ausgebildet sind. Die Verwendung von konzentrischen Flossenwänden oder spiralförmig gewendelten Rohren ist insb. dann angezeigt, wenn der Katalysator als lose Schüttung zwischen die Spaltrohre eingebracht werden soll. Die Verwendung von spiralförmig gewendelten Rohren kann ein unerwünschtes Absacken (Setzen) des Katalysators behindern.

Die Spaltrohre können über ihren unteren Enden zugeordnete Sammler auf dem Deckengewölbe abgestützt sein. Für Aufbau und Betrieb der Anlage erscheint es jedoch zweckmäßiger, daß die stehenden Spaltrohre über eine Verteilerschicht aus Verteilersteinen auf dem Deckengewölbe abgestützt sind, wobei die Verteilersteine unter Umständen sogleich die Deckengewölbesteine sein können.

Um mit einer solchen Verteilerschicht, die über einen oder ein geringe Anzahl von Gaszuführungskanälen herangeführten Gase verteilen zu können, ist vorzugsweise vorgesehen, daß die Verteilersteine so ausgebildet sind, daß sie bei Nebeneinanderanordnung ein flächiges und nach der unteren Seite der Schicht hin im wesentlichen gassdichtes und zu ihrer Oberseite hin mit Gasverteilungsöffnungen versehenes Gasverteilungsnetz aufbauen, und daß die auf der Verteilerschicht aufstehenden Spaltrohre mit Gasführungsrohren durch die Verteilersteine greifen.

Wenn das Heizgas mit Katalysator gefüllte und vom Prozeßgas durchströmte Spaltrohre umströmt, kann es zur Verbesserung des Wärmeübergangs zweckmäßig sein, daß die Spaltrohre in relativ engem Abstand jeweils von einem konzentrischen Hüllrohr umgeben sind, durch das das Heizgas strömt, während außerhalb der Hüllrohre nicht durchströmte Toträume im Bereich des Reformers gebildet sind.

Falls der Wärmeinhalt des Heizgases nach Verlassen des Bereiches des Druckbehälters, in dem die Spaltrohre angeordnet sind, noch hinreichend hoch ist, können weitere Einrichtungen zur Wärmeabfuhr vorgesehen sein.

Zum einen können die Einrichtungen von gesonderten Rohrwicklungen an den Enden der Spaltrohre gebildet sein. Es ist jedoch auch möglich, im Behälter dem Reformer im Abstrom des Produktgases einen gesonderten und in einem anderem Wärmeträgerkreis eingeschalteten Wärmetauscher, insb. Helix-Wärmetauscher zuzuordnen.

Die Erfindung betrifft auch eine Anlage für die katalytische Spaltung gasförmiger Kohlenwasserstoffe, insb. mit Wasserdampf zu einem Produktgas mit einem beheizten Primärreformer mit einer Vielzahl von Spaltrohren und zugeordneten Sammlern und einem Primärkatalysator, mit einem dem Primärreformer nachgeschalteten Sekundärreformer, in dem mindestens ein Teil des den Primärreformer verlassenden Gases unter Zufuhr von Sauerstoff verbrannt und danach zusammen mit dem Rest des Gases über ein Sekundärkatalysatorbett geleitet wird, und einer dem Sekundärreformer nachgeschalteten Einrichtung zur Ausnutzung der in dem Produktgas vorhandenen Abhitze.

Eine solche Anlage ist aus der Zeitschrift "Hydrocarbon Processing", Juni 1982, S. 101-105, insb. Fig. 1 bekannt. Bei der bekannten Anlage weist der Primärreformer eine

Vielzahl von mit dem Primärkatalysatormaterial gefüllten Spaltrohre auf, die in einem großen Abstand voneinander in einer rechteckigen Kammer angeordnet sind und die durch Deckenbrenner beheizt werden.

Die die Spaltrohre verlassenden Gase werden über Übergangsleitungen einem in einem getrennten Behälter angeordneten Sekundärreformer zugeleitet, in dem abgestützt durch ein Zwischengewölbe ein Sekundärkatalysatorbett vorgesehen ist. Durch Zufuhr von Prozeßluft wird zumindest ein Teil des von dem Primärreformer kommenden Gases zur Aufheizung dieses Gases verbrannt. Das heiße Gas durchströmt das Sekundärkatalysatorbett und tritt in den Gassammelraum unter dem Gewölbe ein und wird von dort einem Gaskühler zugeleitet.

Es ist eine weitere Aufgabe der vorliegenden Erfindung, den Aufbau einer solchen Anlage zu vereinfachen und wärmetechnisch zu verbessern.

Diese Aufgabe wird dadurch gelöst, daß der Primärreformer und der Sekundärreformer in einem einzigen Druckbehälter angeordnet sind, und daß das den Sekundärreformer verlassende Produktgas dem Primärreformer zur konvektiven Heizung des Primärreformers zuführbar ist.

Die erfindungsgemäße Anlage bietet den Vorteil, daß die Wärme des Produktgases direkt für den Betrieb des Primärreformers verwendet wird, d. h. die Einrichtung zur Ausnutzung der im Produktgas vorhandenen Abhitze ist im wesentlichen der Primärreformer. Durch die Zusammenfassung von Primärreformer und Sekundärreformer in einem Druckbehälter wird erreicht, daß für den Aufbau der Apparatekombination in dem Druckbehälter praktisch keine druckführenden und temperaturbeanspruchten Rohrleitungen vorliegen. Die Spaltrohre müssen nur die Druckdifferenz des Primär- und Sekundärkatalysators aufnehmen. Auch die innenliegen-

den Sammler mit anschließenden Leitungen sind nur mit Druckdifferenzen beaufschlagt.

Der Hauptvorteil ist also darin zu sehen, daß vor allem zwischen dem Primärreformer und dem Sekundärreformer und gegebenenfalls dem Abhitzesystem verbindende, heißgehende und gleichzeitig druckbelastete Leitungen vermieden werden.

Der gemeinsame Druckbehälter läßt sich durch eine Ausmauerung einfach isolieren und im Vergleich zu zwei getrennten Apparaten sind wesentlich weniger Ein- und Austrittsstutzen erforderlich.

Vorzugsweise sind die Spaltrohre und der Primärkatalysator des Primärreformers im oberen Teil eines stehenden Druckbehälters angeordnet und ist der Verbrennungsbereich des Sekundärreformers im unteren Teil des Behälters angeordnet.

Um eine besonders einfache Gasführung innerhalb des Druckbehälters zu erreichen, ist es zweckmäßig, daß die Sekundärkatalysatorschüttung unterhalb der Spaltrohre und des Primärkatalysators angeordnet ist, da dann das aus dem Primärreformer austretende, in den Sekundärreformer eintretende und von dort zur konvektiven Heizung der Spaltrohre fortgeführte Heizgas (Produktgas) nur einmal umgelenkt werden muß.

Sowohl bei der hängenden als auch bei der abgestützten Anordnung der Spaltrohre ist es möglich, daß der Primärkatalysator in an sich bekannter Weise in den Spaltrohren angeordnet ist und diese von dem als konvektives Heizgas wirkenden heißen Produktgas umströmt sind. In diesem Falle könnte auch in Betracht gezogen werden, daß die Sekundärkatalysatorschüttung zwischen die mit dem Primärkatalysator gefüllten Spaltrohre eingebracht ist, d. h. das Deckengewölbe wird auch zur Abstützung des Sekundärkatalysators herangezogen. Auf diese Weise kann ein noch kompakterer Aufbau der Anlage erzielt werden.

Es kann jedoch in Abweichung von dem eingangs zitierten Stand der Technik gemäß "Hydrocarbon Processing" auch vorgesehen sein, daß der Primärkatalysator als Schüttung zwischen die Spaltrohre eingebracht wird und die Rohre von dem heißen Produktgas durchströmt sind.

Weiterhin ist vorzugsweise vorgesehen, daß die Sekundärkatalysatorschüttung von einem mit Gasdurchlässen versehenem Zwischengewölbe aus keramischen Werkstoff abgestützt ist, wie dies auch bei dem bekannten Sekundärreformer der Fall ist, und die Zuleitung und Teilverbrennung des aus dem Primärreformer austretenden Gases unterhalb des Gewölbes oder oberhalb der Schüttung erfolgt.

Vorzugsweise ist der Primärreformer wie der zuvor beschriebene Reformer gemäß den Ansprüchen 1-13 ausgebildet.

Falls der Wärmeinhalt des als Heizgas verwendeten Produktgases nach Verlassen des Bereiches des Druckbehälters, in dem die Spaltrohre angeordnet sind, noch hinreichend hoch ist, können weitere Einrichtungen zur Wärmeabfuhr vorgesehen sein.

Zum einen können die Einrichtungen von gesonderten Rohrwicklungen an den Enden der Spaltrohre gebildet sein. Es ist jedoch auch möglich, im Behälter dem Primärreformer im Abstrom des Produktgases einen gesonderten und in einem anderem Wärmeträgerkreis eingeschalteten Wärmetauscher, insb. Helix-Wärmetauscher zuzuordnen.

Die Erfindung soll nun anhand der beigefügten Figuren näher erläutert werden. Es zeigen

FIG. 1 einen schematischen Längsschnitt durch eine erste Ausführungsform eines Reformers, wobei die Spalt-

rohre über Sammler auf einem keramischen Deckengewölbe abgestützt sind,

FIG. 2 eine Ausführungsform der Spaltrohre,

FIG. 3A und 3B eine weitere Ausführungsform,

FIG. 4 einen Längsschnitt durch einen Reformer mit direkt auf einer Verteilerschicht aus Keramikformsteinen abgestützten Spaltrohren,

FIG. 5 ein Teilschnitt zur Erläuterung der am oberen Ende der Spaltrohre vorgesehenen Rohrwicklungen, die vorzugsweise zu außenliegenden Sammlern führen, und zur Dehnungskompensation und gleichzeitig auch der Abwärmenutzung dienen.

FIG. 6 einen Schnitt durch mehrere zusammengesetzte Verteilersteine,

FIG. 7 einen Schnitt längs der Linie VII-VII in Fig. 6

FIG. 8 einen Schnitt durch eine Verteilung abgewandelte Formen von Verteilersteinen,

FIG. 9 einen Längsschnitt durch einen Reformer mit hängenden Spaltrohren und einer Katalysatorschüttung zwischen den Spaltrohren,

FIG. 10 einen Längsschnitt durch einen Reformer mit hängenden Spaltrohren, die mit Katalysator gefüllt sind, und

FIG. 11 einen Teilschnitt durch einen Reformer vergleichbar Fig. 5, wobei oberhalb des Reformers eine Abhitzeheizfläche in demselben Druckbehälter angeordnet ist.

FIG. 12 einen schematischen Längsschnitt durch eine erste Ausführungsform eines Primär-Sekundärreformers, wobei die Spaltrohre über Sammler auf einem keramischen Deckengewölbe abgestützt sind,

FIG. 13 einen Längsschnitt durch einen Primär-Sekundärreformer mit direkt auf einer Verteilerschicht aus Keramikformsteinen abgestützten Spaltrohren,

FIG. 14 einen Längsschnitt durch einen Primär-Sekundärreformer mit hängenden Spaltrohren und einer Primärkatalysatorschüttung zwischen den Spaltrohren,

FIG. 15 einen Längsschnitt durch einen Primär-Sekundärreformer mit hängenden Spaltrohren, die mit Primärkatalysator gefüllt sind,

FIG. 16 einen Längsschnitt durch einen Primär-Sekundärreformer mit auf einer Verteilerschicht abgestützten und mit Primärkatalysator gefüllten Spaltrohren, wobei der Sekundärkatalysator als Schüttung zwischen die Spaltrohre eingebracht ist.

Bei der Ausführungsform gemäß FIG. 1 besteht der in einem stehenden Druckbehälter (1) mit Isolierausmauerung (1a) und gegebenenfalls einer oder mehrere weitere Isolierschichten angeordnete Reformer (R) aus einer Vielzahl von Spaltrohren (2), die an ihren unteren Enden jeweils gruppenweise mit Sammlern (3) und an ihrem oberen Ende mit einem Sammler (4) verbunden sind.

Die Sammler (3) ruhen auf einem sich quer durch den Behälter erstreckenden Deckengewölbe (5) aus hochfesten hochtemperaturbeständigen Bausteinen (6) aus einem keramischen Werkstoff, z. B. Al_2O_3 oder SiO_2 .

Zwischen dem unteren Ende (4a) des Sammlers (4) und der Oberseite (5a) des Deckengewölbes (5) ist ein Verdrängerhohlkörper (7) angeordnet, falls dies aus Strömungsgründen erforderlich ist. Zwischen den Spaltrohren (2) ist eine Katalysatorschüttung (K) eingebracht.

Das oben in den Behälter (1) eintretende Prozeßgas (PZ) durchströmt die Katalysatorschüttung (K) und tritt durch in dem Deckengewölbe (5) vorgesehene Kanäle (5b) in einen von dem Deckengewölbe überspannten Gassammelraum (9) ein, und wird aus diesem nach unten oder zur Seite abgezogen.

Von außen wird über eine oder mehrere Zuleitungen (10) heißes Heizgas (HG), wie z. B. Helium von einem Hochtemperaturreaktor, in den die Sammler (3) eingeleitet und durchströmt die Spaltrohre (2) und wird über den Sammler (4) abgeführt.

Die Spaltrohre sind mit ihren oberen Enden, die im Durchmesser kleiner sein können als die Spaltrohre selbst, so an den Sammler (4) herangeführt, daß sich die Spaltrohre (2) nach oben ausdehnen können.

Das Deckengewölbe (5) fängt sowohl die Last der Spaltrohre (2) als auch das Gewicht des Katalysators (K) sicher nach unten ab.

Die Spaltrohre (2) können als von einander getrennt geführte Einzelrohre ausgebildet sein; es werden jedoch die in den FIG. 2 und 3 gezeigten Ausführungsformen bevorzugt.

Bei der Ausführungsform gemäß FIG. 2 sind die einzelnen Spaltrohre (2) durch Stege (2a) zu Rohrzylindern (RZ) miteinander verbunden, die zueinander konzentrisch angeordnet sind, d. h. bei Vergleich der FIG. 2 und 1 sind jeweils drei Rohrzylinder mit einem Sammler (3) verbunden.

Die oberen Enden der Rohre des Rohrzylinder (RZ) sind in der aus der FIG. 2 ersichtlichen Weise über einen gekrümmten Abschnitt (2b) mit dem Sammler (4) verbunden.

Bei der Ausführungsform gemäß FIG. 3 sind mehrere Rohr (2) durch Stege (2a) zu Rohrbrettern (RB) miteinander verbunden, die spiralig gewickelt und in entsprechender Weise mit den Sammlern (3) und (4) verbunden sind.

Bei der Ausführungsform gemäß FIG. 4 ist der Katalysator (K) in die einzelnen Spaltrohre (2') eingebracht. An ihren oberen Enden sind die Rohre (2') mit einem Ringsammler (4') verbunden, während sie an ihren unteren Enden mit im Durchmesser reduzierten Gasführungsrohren (15) verbunden sind. Die Rohre (2') und die Gasführungsrohre (15) können auch einstückig miteinander ausgebildet sein. Die Gasführungsrohre (15) durchgreifen eine auf der Oberseite (5a) des Deckengewölbes aufliegende Verteilerschicht (16) aus Gasverteilersteinen (17) und das Deckengewölbe selbst.

Mittig durch den Gassammelraum (9) erstreckt sich eine Gasführungssäule (18) von dem Boden des Gassammelraums (9) bis zur Verteilerschicht (16).

Bei dieser Ausführungsform wird das Prozeßgas (PZ) über den Verteiler (4') auf die auf der Verteilerschicht (16) aufstehende und mit Katalysator (K) gefüllte Rohre (2') verteilt. Das Gas tritt über die Gasführungsrohre (15) in den Raum (9) ein, und wird von dort abgeführt. Heizgas (HG) wird über eine Bodenöffnung (18a) der Führungssäule (18) zugeführt, strömt nach oben und tritt in die Gasverteilerschicht (16) ein. Durch die Gasverteilerschicht (16) wird dafür Sorge getragen, daß das Heizgas (HG) gleichmäßig um die Vielzahl der Rohre (2') herumgeführt wird, ehe es den Behälter am oberen Ende verläßt.

Auch hierbei wird die Differenzdehnung der Rohre (2') am oberen Ende aufgenommen.

Während bei der Ausführungsform gemäß FIG. 4 innenliegende Sammler (4') vorhanden sind, ist es auch möglich, außenliegende Sammler zu verwenden, wie dies an Hand der FIG. 5 beschrieben werden soll.

Bei der in der FIG. 5 dargestellten Ausführungsform sind die oberen Enden der Rohre (2') über Helixwicklungen (19) mit einem außenliegenden Sammler (4'') verbunden. Bei dieser Anordnung wird dem Heizgas (HG), nachdem es längs der Spaltrohre (2') geströmt ist, durch die Helixwicklungen (19) noch Wärme entzogen.

An Hand der FIG. 6 bis 8, soll nun die Funktionsweise der Verteilerschicht (16) näher erläutert werden.

Bei der in den FIG. 6 und 7 gezeigten Ausführungsform besitzen die Verteilersteine (17) einen Standabschnitt (17a) und einen Kopfabschnitt (17b), die durch einen Säulenabschnitt (17c) miteinander verbunden sind. Standabschnitt (17a) und Kopfabschnitt (17b) weisen einen hexagonalen Querschnitt auf, wobei jedoch im Falle des Kopfabschnitts (17b) die Ecken gebrochen sind. Der Säulenabschnitt (17c)

weist einem im Durchmesser reduzierten kreisförmigen Querschnitt auf.

Der Standabschnitt (17a) ist auf seiner Unterseite mit einem Führungszapfen (17d) versehen. Jeder Stein ist von einem an den Durchmesser der Gasleitungsrohre (15) angepassten mittigen Kanal (17e) versehen, der im Bereich des Kopfabschnitts (17b) mit einer konischen Ausweitung (17f) versehen ist.

Der Katalysator (K) ist im einzelnen Rohr (2') durch ein Lochgitter (2'c) gehalten.

Auf der Oberseite (5a) des Deckengewölbes oder in einer gesonderten Lage aus Formsteinen (20) sind an den Führungszapfen (17d) angepasste Ausnehmungen (21) vorgesehen. Die Formsteine (20) und die Steine des Deckengewölbes sind mit dem Kanal (17e) entsprechenden Bohrungen (20a) bzw. Kanälen (5b) versehen.

Wie aus den FIG. 6 und 7 ersichtlich ist, bildet sich beim Zusammenstellen einer Vielzahl der Formsteine (17) zwischen den Säulenabschnitten (17c) ein gitterartiger Gasverteilungshohlraum (22), in den das Heizgas (HG) aus der Gasführungssäule (18) eintreten kann. Aus diesem Gasverteilungsgitter tritt das heiße Gas durch die von den gebrochenen Kanten der Kopfabschnitte gebildeten Gasführungskanäle (23) in den Bereich des Katalysators ein. Die Verteilersteine (17) leiten zum einen die Last der mit dem Katalysator gefüllten Spaltrohre (2') in das Deckengewölbe (5) ein und ermöglichen zum anderen die Verteilung des Gases. Die Steine stellen gleichzeitig die untere Führungsplatte für die Spaltrohre dar. Damit das aus den Führungsrohren (15) austretende Gas auch in den Sammelraum (9) einströmt, muß eine Abdichtung zum oberen Strömungsraum erfolgen. Diese Abdichtung wird zum einen durch den Eingriff des Zapfens (17d) in die Steine (20) bzw. in das

Deckengewölbe (5) erreicht und zum anderen durch das Aufliegen des Spaltrohrbodens (2) im Bereich der konischen Aufweitung (17f) auf dem einzelnen Verteilerstein. Zusätzlich stellt der enge Spalt des Führungsrohres in den Steinen (20) und/oder den Steinen des Gewölbes (5) eine sogenannte Spaltdichtung dar. Die Wirkung dieser Spaltdichtung könnte noch dadurch erhöht werden, daß im Bereich der Steine (20) bzw. der Steine des Deckengewölbes (5) eine Labyrinthdichtung vorgesehen wird.

Da das Spaltrohr (2) nur auf dem Verteilerstein (17) aufliegt, ist bei Betrieb keine Kraft in radialer Richtung vorhanden. Jedoch können leichte Unsymmetrien hinsichtlich der radialen Kräfte entstehen, die dann durch ein geringes Verbiegen des Gasführungsrohres (15) im Bereich der konischen Erweiterung (17f) aufgenommen werden können. Das Gasführungsrohr (15) des einzelnen Spaltrohrs (2') kann leicht aus dem Formstein (17) herausgezogen und ausgetauscht werden. Die Gasführungssäule (18) wird vorzugsweise aus einer das Gewölbe (5) mit abstützenden Außenmauerung (18b) aus den für das Gewölbe verwendeten Keramiksteinen und einem innenliegenden Schutzrohr (18c) aufgebaut.

Bei der Ausführungsform gemäß FIG. 8 sind nicht die hexagonalen Ecken der Kopfabschnitte (17) gebrochen, sondern entsprechende Ausnehmungen sind am Kopfabschnitt entweder an gegenüberliegenden Seiten zweier Steine vorgesehen und bilden Kanäle (23') (vgl. in der FIG. 8 linkes Tripel von Bausteinen (17)), oder jeweils an mindestens einer Seite eines Steines ist eine hinreichend große Ausnehmung vorgesehen, die zusammen mit einer nicht ausgenommenen Seite einen Gasführungs kanal (23'') bilden. (Vergleiche das rechte Tripel von Verteilersteinen in der FIG. 8.) Hinsichtlich Geometrie und Ausbildung wird insb. auf die FIG. 6, 7 und 8 hingewiesen. Andere Geometrien für die Verteilersteine sind denkbar, z. B. quaderförmige.

Die Ausführungsformen gemäß FIG. 9 und 10 unterscheiden sich von den bisher beschriebenen Ausführungsformen dadurch, daß die Spaltrohre (2, 2') nicht auf einem Deckengewölbe abgestützt sind.

Bei der Ausführungsform gemäß FIG. 9 sind die Tragrohre (2) über den Sammler (4) an einer Tragkonstruktion (24) aufgehängt, die sich ihrerseits an dem Behälter (1) abstützt. Am unteren Ende des Verdrängerkörpers (7) ist eine mit Löchern (25a) und (25b) für das Gas bzw. für die Spaltrohre versehene Bodenplatte (25) verbunden, durch die die Rohre (2) zu einem Sammler (3) hindurchgeführt sind. Die Bodenplatte trägt auch die zwischen den Rohren (2) eingeschüttete Katalysatorschüttung (K). Das Produktgas (PD) wird unter der Bodenplatte (25) abgezogen.

Dem Sammler (3) wird von unten Heizgas (HG) zugeführt. Bei dieser Ausführungsform sind also die Spaltrohre (2) hängend gelagert und tragen gemeinsam mit dem mittigen Verdränger (7) zusätzlich das Gewicht der Katalysatorschüttung (K) mit. Die Dehnungskompensation erfolgt im wesentlichen durch Schieben des unteren Sammlers. Auch bei dieser Ausführungsform können neben den Einzelrohren auch Flossenwandzylinder und spiralförmig gewickelte Flossenwände zum Einsatz kommen. Selbstverständlich kann an Stelle des einen Sammlers (3) auch eine Mehrzahl von Sammlern eingesetzt werden, z. B. baugleich FIG. 1.

Bei der in der FIG. 10 gezeigten Ausführungsform befindet sich der Katalysator in den Spaltrohren, die einzelhängend an einer Tragplatte (26) befestigt sind. Die unteren Enden der Spaltrohre (2') sind mit einem Sammler (3) verbunden, aus dessen unteres Ende das Produktgas (PD) abgezogen wird. Wie aus der FIG. 10, linke Hälfte ersichtlich ist, können den einzelnen Spaltrohren (2') konzentrische Hüllrohre (27) mit Abstand zugeordnet werden, die von einer unterhalb der Tragplatte (26) angeordneten Trag-

platte (28) herabhängen. Die rechte Hälfte zeigt die Anordnung ohne Hüllrohr.

Bei dieser Ausführungsform erfolgt der Dehnungsausgleich durch Schieben des unteren Sammlers (3); die konvektive Beheizung kann mit oder ohne Hüllrohr erfolgen.

Schließlich zeigt die FIG. 11, daß es bei hinreichendem Wärmeinhalt des Heizgases, nicht nur sinnvoll sein kann, wie bei FIG. 5 vorzugehen, sondern einen vom direkten Kreislauf abgekoppelten Wärmetausch vorzunehmen. Zu diesem Zwecke wird oberhalb der Spaltrohre in den Behälter noch ein Wärmetauscher (29), z. B. Helixwärmetauscher, mit Eintrittsammler (29a), Heizflächen (29b), Austrittsammler (29c) und Verdrängerkörper (29d) angeordnet, der mit einem Wärmeträgermedium (WM) beaufschlagt wird.

Bei der Ausführungsform gemäß FIG. 12 weist der Primär-Sekundärreformer einen Primärreformer (PR) auf, der dem in FIG. 1 gezeigten entspricht; insoweit sind die Bezugszeichen übernommen worden, und es wird auf die entsprechenden Beschreibungsteile verwiesen. Zwischen den Spaltrohren (2) ist eine Primärkatalysatorschüttung (PK) eingebracht.

Das oben in den Behälter (1) eintretende Prozeßgas (PZ) durchströmt die Primärkatalysatorschüttung (PK) und tritt durch die in dem Deckengewölbe (5) vorgesehene Kanäle (5b) in den Gassammelraum (9) ein. Über eine oder mehrere mit Brennern (8) versehene Leitungen (10') werden dem in den Sammelraum (9) eintretenden Gas mindestens Sauerstoff und evtl. zusätzlich über eine oder mehrere Zusatzleitungen (nicht gezeigt) brennbare Kohlenwasserstoffe, CO_2 , und/oder Dampf zugemischt und ein Teil der über die Kanäle (5b) in den Raum (9) eintretenden Gase verbrannt.

Der Gewölberaum (9) unterhalb des Deckengewölbes (5) ist durch ein Zwischengewölbe (12) unterteilt. In dem Raum oberhalb des Zwischengewölbes, in den das Gas durch die Kanäle (5b) eintritt, ist eine Sekundärkatalysatorschüttung (SK) eingebracht. Das durch die Brennerflammen aufgeheizte Gas durchströmt den Sekundärkatalysator (SK) und tritt durch Kanäle (12a) in einen weiteren Gassammelraum (13) unterhalb des Zwischengewölbes (12) ein.

In dem unteren Teil des Behälters (1) ist somit ein Sekundärreformer (SR) ausgebildet.

Das in dem Sammelraum (13) gesammelte Produktgas (PD) wird über Leitungen (14) in die Sammler (3) eingeleitet und durchströmt die Spaltrohre (2), d. h. es dient als Heizgas für die konvektive Erwärmung der Primärkatalysatorschüttung und des die Schüttung durchströmenden Prozeßgases (PZ).

Wie aus der Linken Hälfte der FIG. 12 ersichtlich ist, können die Tragwände (5c) des Deckengewölbes (5) mit nach Innen im wesentlichen radial und sich zwischen den Gewölben (5) und (12) axial entsprechende vorspringenden Nasen (11) versehen sein, um die Zuleitungskanäle (14) vor den höheren Temperaturen zu schützen, bzw. eine Reibbewegung durch Relativdehnung im Sekundärkatalysator (SK) zu vermeiden. Aus Gründen der einfachen Darstellung sind die Ringssammler (3) nur über je einen Zuleitungskanal (14) mit dem Sammlerraum (13) verbunden, so daß nur eine Nase erforderlich ist.

Die Spaltrohre (2) können als von einander getrennt geführte Einzelrohre ausgebildet sein; es werden jedoch die in den FIG. 2 und 3 gezeigten Ausführungsformen bevorzugt. Die bei einem Primär-Sekundärreformer zu berücksichtigenden Bezugszeichen sind in Klammern in den FIG. 2 und 3 berücksichtigt.

Bei der Ausführungsform gemäß FIG. 13 ist der Primärkatalysator (PK) entsprechend dem Reformer gemäß FIG. 4 ausgebildet. Entsprechend sind die Bezugszeichen beibehalten worden.

Bei dieser Ausführungsform wird das Prozeßgas (PZ) über den Verteiler (4') auf die auf der Verteilerschicht (16) aufstehende und mit Primärkatalysator (PK) gefüllte Rohre (2') verteilt. Das Gas tritt über die Gasführungsrohre (15) in den Raum (9) ein, wird dort durch die Flammen der Brenner (8) erwärmt, durchströmt den Sekundärkatalysator (SK) und tritt in den Gassammelraum (13) ein. Diesen verläßt es über die Durchlässe (18a) in der Führungssäule (18), strömt nach oben und tritt in die Gasverteilerschicht (16) ein. Durch die Gasverteilerschicht (16) wird dafür Sorge getragen, daß das heiße Produktgas (PD) gleichmäßig um die Vielzahl der Rohre (2') herumgeführt wird, ehe es den Behälter am oberen Ende verläßt. (Auf die FIG. 6-8 und die entsprechenden Beschreibungsteile wird verwiesen); auch hier sind die entsprechenden Bezugszeichen in FIG. 7 in Klammern vermerkt.

Während bei der Ausführungsform gemäß FIG. 13 innenliegende Sammler (4') vorhanden sind, ist es auch möglich, außenliegende Sammler zu verwenden, wie dies an Hand der FIG. 5 beschrieben worden ist. (Auch hier ist das entsprechende Gas in FIG. 5 in Klammern vermerkt.)

Die Ausführungsformen gemäß FIG. 14 und 15 unterscheiden sich von den bisher beschriebenen Ausführungsformen gemäß FIG. 12 und 13 dadurch, daß die Spaltrohre (2, 2') nicht auf einem Deckengewölbe abgestützt sind, wie dies bei den Ausführungsformen gemäß FIG. 9 und 10 beschrieben ist.

Bei der Ausführungsform gemäß FIG. 14 wird das Prozeßgas (PZ) dem Behälter (1) von oben zugeführt, durchströmt die Primärkatalysatorschüttung (PK), wird erwärmt, durchströmt die von dem Zwischengewölbe (12) gehaltenen Sekundärkatalysatorschüttung (SK) und wird über den Gassammelraum (13) in den Sammler (3) eingeleitet.

Bei der in der FIG. 15 gezeigten Ausführungsform befindet sich der Primärkatalysator in den Spaltrohren, die einzelhängend an einer Tragplatte (26) befestigt sind. Die unteren Enden der Spaltrohre (2') sind mit einem Sammler (3) verbunden, dessen unteres Ende in den von dem Zwischengewölbe (12) überspannten Gassammelraum (13) mündet. Die Sauerstoffzufuhr (10') erfolgt in Abweichung von der Ausführungsform gemäß FIG. 14 in den Gassammelraum (13), so daß das erhitzte Gas über die Durchlässe (12a) von unten in die Sekundärkatalysatorschüttung (SK) eintritt. Das Produktgas (PD) tritt aus der Sekundärkatalysatorschüttung (SK) aus, umströmt die Spaltrohre (2') und wird unterhalb der Platte (26) aus dem Behälter abgezogen.

Die in der FIG. 16 gezeigte Ausführungsform unterscheidet sich von der Ausführungsform gemäß FIG. 4 bzw. 13 zunächst dadurch, daß die Beaufschlagung der Gasverteilungsschicht nicht von der Mitte her sondern vom Rand über Kanäle (5d) in der Wand (5c) erfolgt. Eine solchen Führung kann selbstverständlich auch bei der FIG. 4 bzw. 13 verwendet werden. Bezüglich der FIG. 13 besteht ein wesentlicher Unterschied auch noch darin, daß unterhalb des Gassammelraums (9), in dem die Verbrennung stattfindet, kein weiterer Gassammelraum (13) vorgesehen ist, sondern daß das erhitzte Gas direkt der Verteilerschicht (16) zugeführt wird und der Sekundärkatalysator als Schüttung zwischen den Spaltrohren (2') eingebracht ist. Für den Fall das keine Sekundärkatalysatorschüttung erforderlich ist, die bis zum oberen Ende der Spaltrohre (2') reicht, ist es denkbar, als Verdränger eine

"DUMMY"-Katalysator-Schüttung auf die Sekundärkatalysatorschüttung aufzuschütten, d. h. eine katalytisch inaktive Deckschicht.

Auch bei einem Primär-Sekundärreformer kann der Einsatz der Ausführungsform gemäß FIG. 11 sinnvoll sein.

In den Figuren ist der Behälter (1) zur Vereinfachung der Darstellung meistens einstückig dargestellt. Er kann aber aus mittels Flanschen verbundenen Teilen bestehen. Weiterhin sind Mannlöcher und evtl. vorhandene gesonderte Öffnungen für das Einfüllen und/oder Abziehen von Katalysatormaterial aus denselben Gründen nicht dargestellt. Weiterhin können längs der Rohre noch ein oder mehrere abstandshaltende Führungsgitter vorgesehen sein, wie z. B. Gitter (30) in FIG. 4 und 13.

Patentansprüche

1. Reformer für die katalytische Spaltung gasförmiger Kohlenwasserstoffe, insb. mit Wasserdampf, zu einem Produktgas mit einem Druckbehälter, einer Vielzahl von in dem Behälter parallel zueinander angeordneten Spaltrohren und einem Katalysator, wobei durch die Rohrwände hindurch konvektiv Wärme von einem heißen Heizgas auf das den Katalysator durchströmende Prozeßgas übertragbar ist, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t, daß das Heizgas (HG) durch die Spaltrohre (2') geführt ist und der Katalysator (K) in dem Druckbehälter (1) zwischen die Spaltrohre als Schüttung eingebracht ist.
2. Reformer nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t, daß die Spaltrohre (2') und der Katalysator (K) hängend in dem Behälter (1) abgestützt sind.
3. Reformer für die katalytische Spaltung gasförmiger Kohlenwasserstoffe insb. mit Wasserdampf zu einem Produktgas mit einem Druckbehälter, einer Vielzahl von in dem Behälter parallel zueinander angeordneten Spaltrohren und einem Katalysator, wobei durch die Rohrwände hindurch konvektiv Wärme von einem heißen Heizgas auf das den Katalysator durchströmende Prozeßgas übertragbar ist, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t, daß die Rohre (2; 2') stehend auf einem aus einem keramischen Werkstoff aufgebauten und einen Gassammelraum (9) für das Produktgas (PD)

begrenzenden und mit Gasdurchlässen (5b) versehenen Deckengewölbe (5) zusammen mit dem Katalysator (K) abgestützt sind.

4. Reformer nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Katalysator (K) in den Spaltrohren (2) angeordnet ist, und daß die Spaltrohre von dem Heizgas umströmt sind.

5. Reformer nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Katalysator (K) als Schüttung zwischen die Spaltrohre (2) eingebracht ist und die Rohre von dem Heißgas durchströmt sind.

6. Reformer nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Spaltrohre (2; 2') in an sich bekannter Weise als getrennte Einzelrohre ausgebildet sind oder als zur Behälterachse konzentrische Flossenwände (RZ) oder als spiralförmig gewickelte und gegebenenfalls miteinander verschweißte Flossenbretter (RB) ausgebildet sind.

7. Reformer nach einem der Ansprüche 3 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die stehenden Spaltrohre (2) über Sammler (3) auf dem Deckengewölbe (5) abgestützt sind.

8. Reformer nach einem der Ansprüche 3 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die stehenden Spaltrohre (2) über eine Verteilerschicht (16) aus Verteilersteinen (17) auf dem Deckengewölbe (5) abgestützt sind.

9. Reformer nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Verteilersteine (17) so ausgebildet sind, daß sie bei Nebeneinanderanordnung ein

flächiges und nach der unteren Seite der Schicht hin im wesentlichen gasdichtes und zu ihrer Oberseite hin mit Gasverteilungsöffnungen (23; 23', 23'') versehenes Gasverteilungsnetz aufbauen, und daß die auf dem Verteilerschicht (16) aufstehenden Spaltrohre (2; 2') mit Gasführungsrohre (15) durch die Verteilersteine (17) greifen.

10. Reformer nach einem der Ansprüche 2 bis 4 und 6-9, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß mit Katalysator (K) gefüllte und vom Prozeßgas (PZ) durchströmte Spaltrohre (2') in relativ engem Abstand jeweils von einem konzentrischen Hüllrohr (27) umgeben sind, durch das das Heizgas (HG) strömt, während außerhalb der Hüllrohre nichtdurchströmte Toträume im Bereich des Reformers gebildet sind.
11. Reformer nach einem der Ansprüche 1 bis 10, d a - d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß Einrichtungen (19; 29) zur weiteren Wärmeabfuhr aus dem Heizgas (HG) nach dem konvektiven Erwärmen des Katalysators (K) vorgesehen sind.
12. Reformer nach Anspruch 11, d a d u r c h g e - k e n n z e i c h n e t, daß die Einrichtungen zur weiteren Wärmeabfuhr von gesonderten Rohrwicklungen (19) an den einen Enden der Spaltrohre gebildet sind.
13. Reformer nach Anspruch 11, d a d u r c h g e - k e n n z e i c h n e t, daß in dem Druckbehälter (1) dem Reformer (R) im Abstrom des Heizgases (HG) ein gesonderter und in einem anderen Wärmeträgerkreis eingeschalteter Wärmetauscher (29) zugeordnet ist.

14. Anlage für die katalytische Spaltung gasförmiger Kohlenwasserstoffe insb. mit Wasserdampf zu einem Produktgas mit einem beheizten Primärreformer mit einer Vielzahl von Spaltrohren und zugeordneten Sammlern und einem Primärkatalysator, mit einem dem Primärreformer nachgeschalteten Sekundärreformer, in den mindestens ein Teil des den Primärreformer verlassenden Gases unter Zufuhr von Sauerstoff verbrannt und danach zusammen mit dem Rest des Gases über eine Sekundärkatalysatorschüttung geleitet wird, und einer dem Sekundärreformer nachgeschalteten Einrichtung zur Ausnutzung der in dem Produktgas vorhandenen Abhitze, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß der Primärreformer (PR) und der Sekundärreformer (SR) in einem einzigen Druckbehälter (19) angeordnet sind und daß das den Sekundärreformer (SR) verlassende Produktgas (PD) dem Primärreformer (PR) zur konvektiven Heizung des Primärreformers zuführbar ist.
15. Anlage nach Anspruch 14, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß die Spaltrohre (2) und der Primärkatalysator (PK) des Primärreformers (PR) im oberen Teil eines stehenden Druckbehälters angeordnet sind, und der Verbrennungsbereich (8, 9, 10) des Sekundärreformers (SR) im unteren Teil des Behälters (1) angeordnet ist.
16. Anlage nach Anspruch 14 oder 15, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß die Sekundärkatalysatorschüttung (SK) unterhalb der Spaltrohre (2) und des Primärkatalysators (PK) angeordnet ist.
17. Anlage nach Anspruch 14 oder 15, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß die Sekundärkatalysatorschüttung (SK) zwischen die mit dem Primärkatalysator (PK) gefüllten Spaltrohre (2') eingebracht ist.

18. Anlage nach einem der Ansprüche 14 bis 17, d a -
d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß die Sekun-
därkatalysatorschüttung (SK) von einem mit Gasdurch-
lässen (12a) versehenem Zwischengewölbe (12) aus kera-
mischen Werkstoff abgestützt ist, und die Zuleitung
(10) und Teilverbrennung (8) des aus dem Primärre-
former (PR) austretenden Gases unterhalb des Gewölbes
(12) oder oberhalb Schüttung (SK) erfolgt.
19. Anlage nach einem der Ansprüche 14 bis 18,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß der
Primärreformer (PR) wie der Reformer nach einem der
Ansprüche 1 bis 13 ausgebildet ist.

2/14

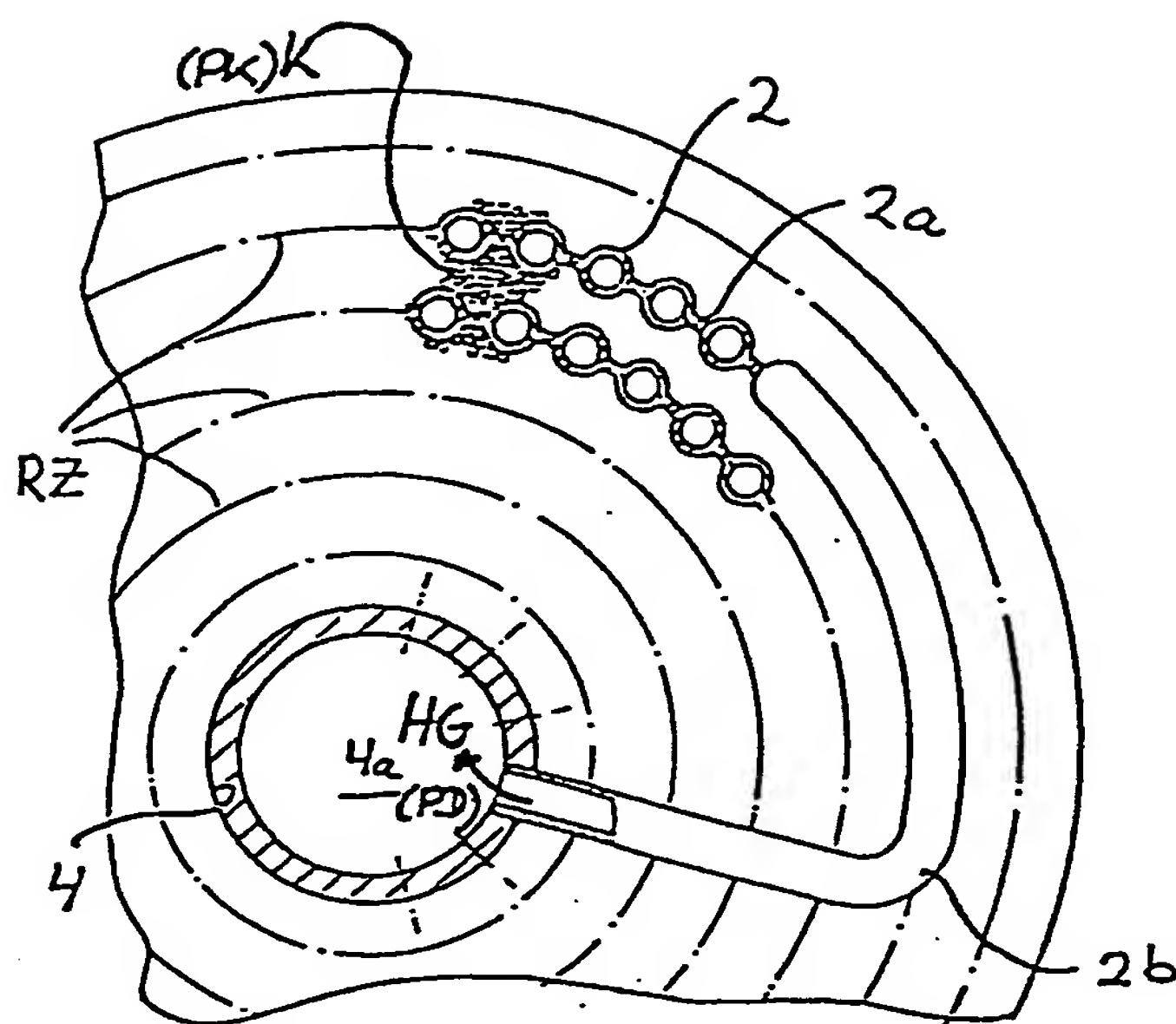


FIG. 2

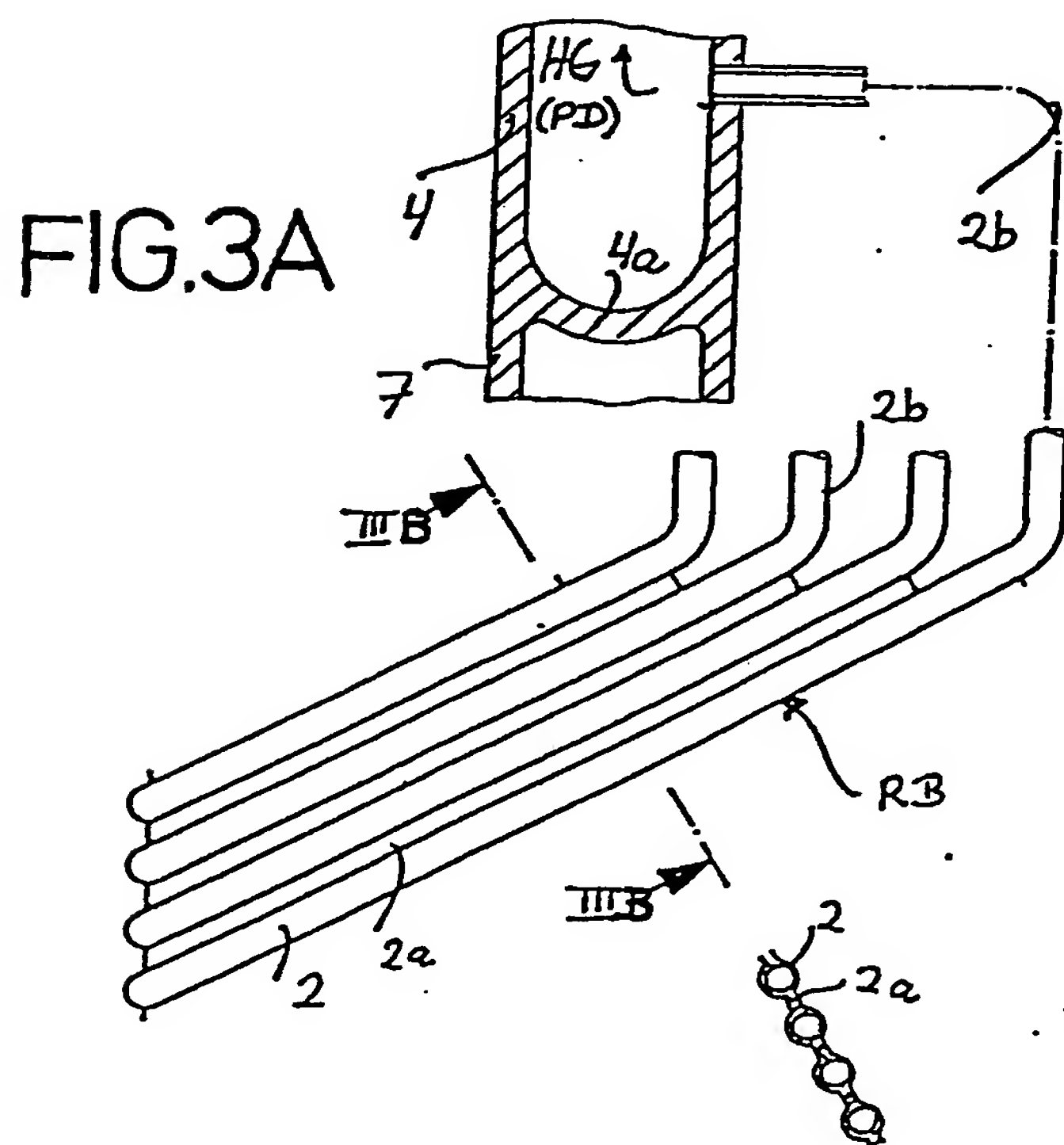


FIG. 3A

FIG. 3B

3/14

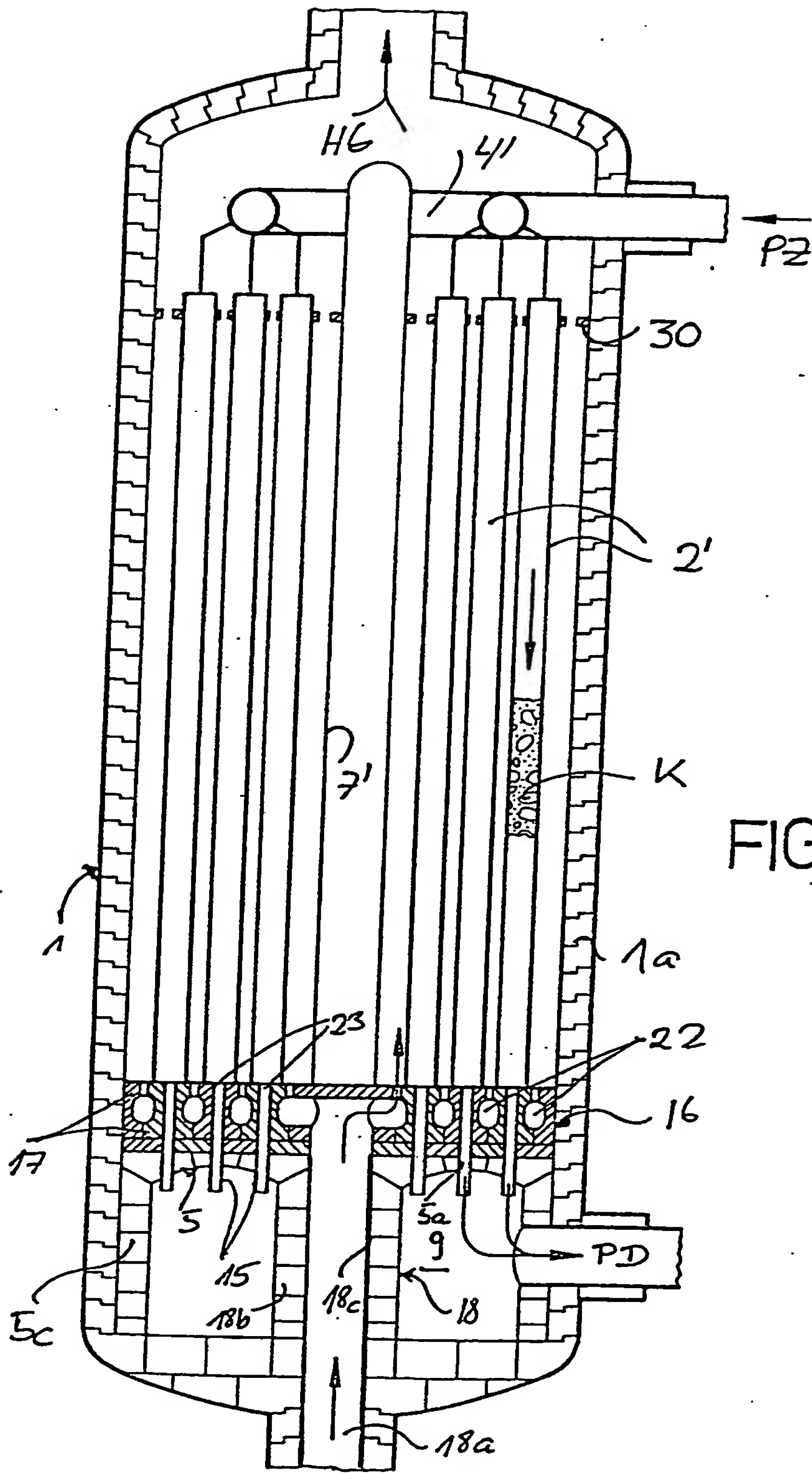
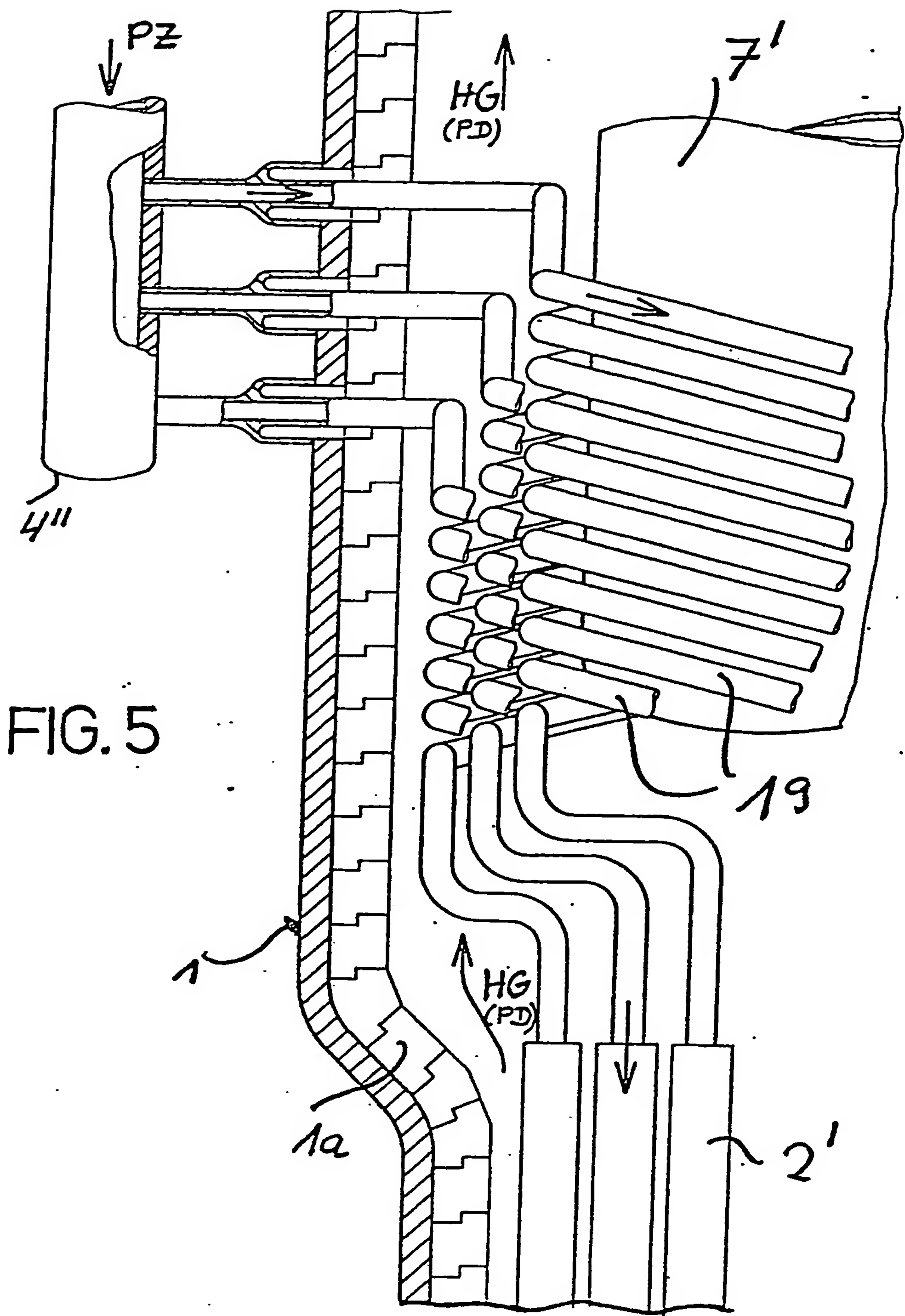


FIG.4

4/14



5/14

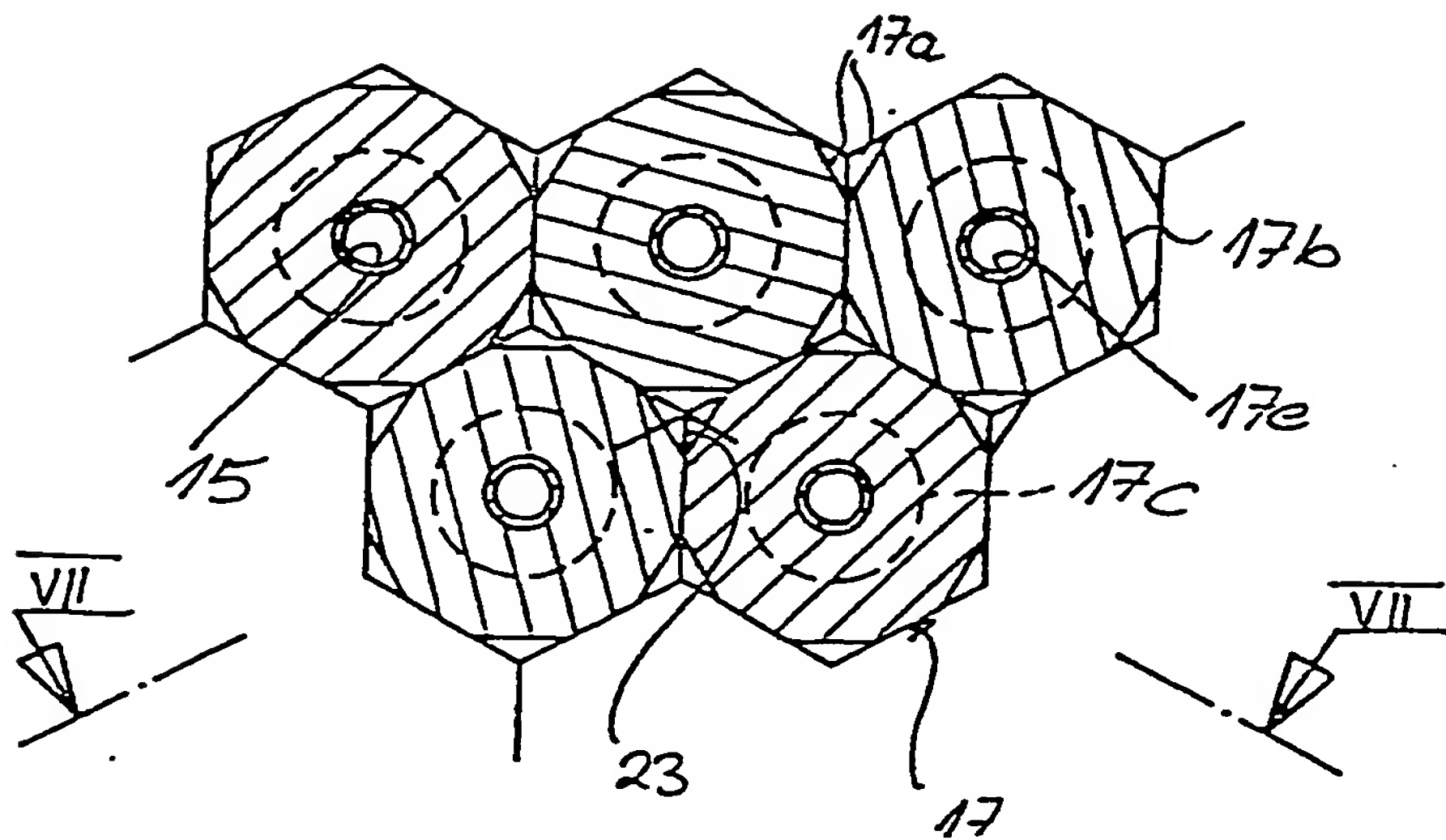


FIG. 6

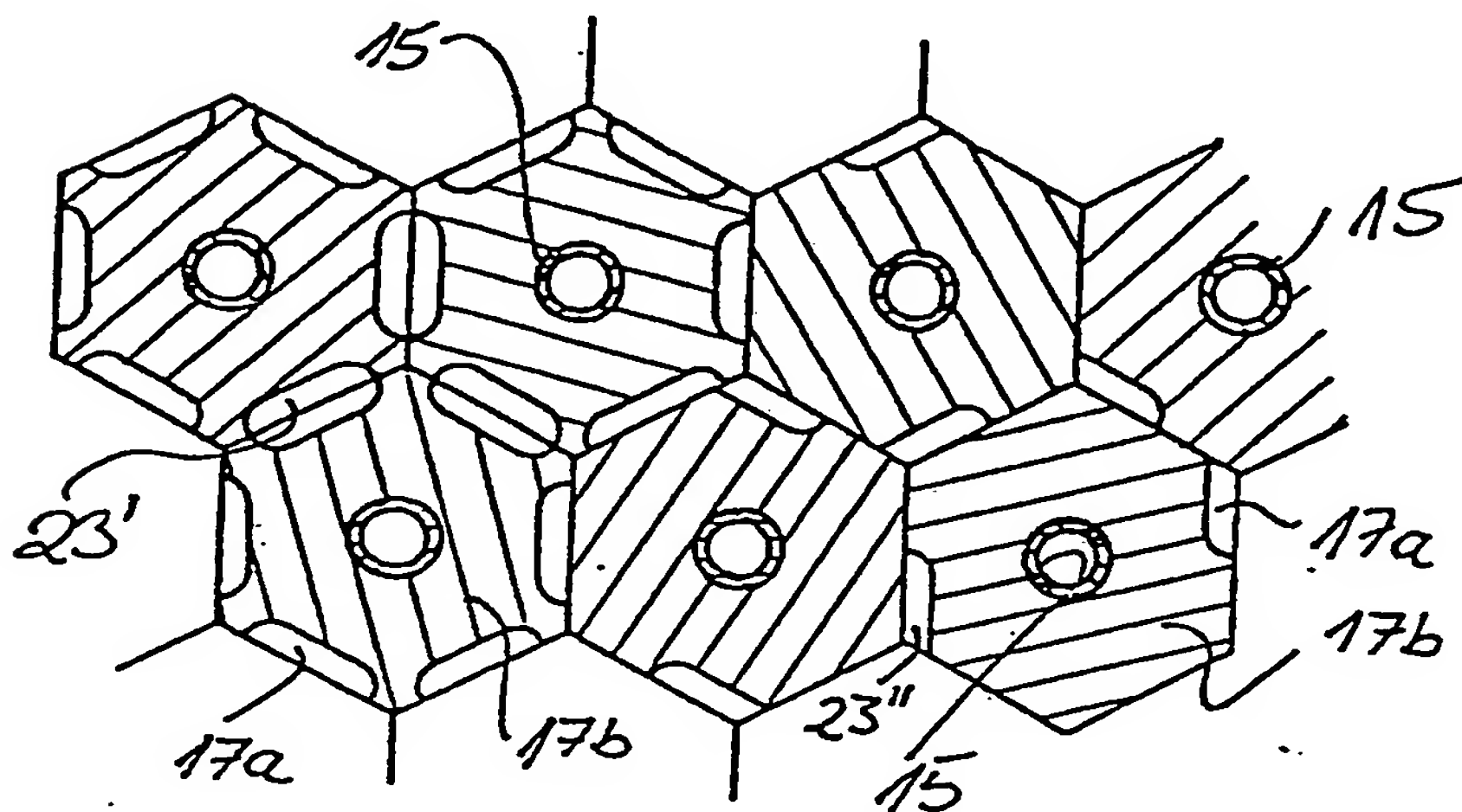


FIG. 8

6/14

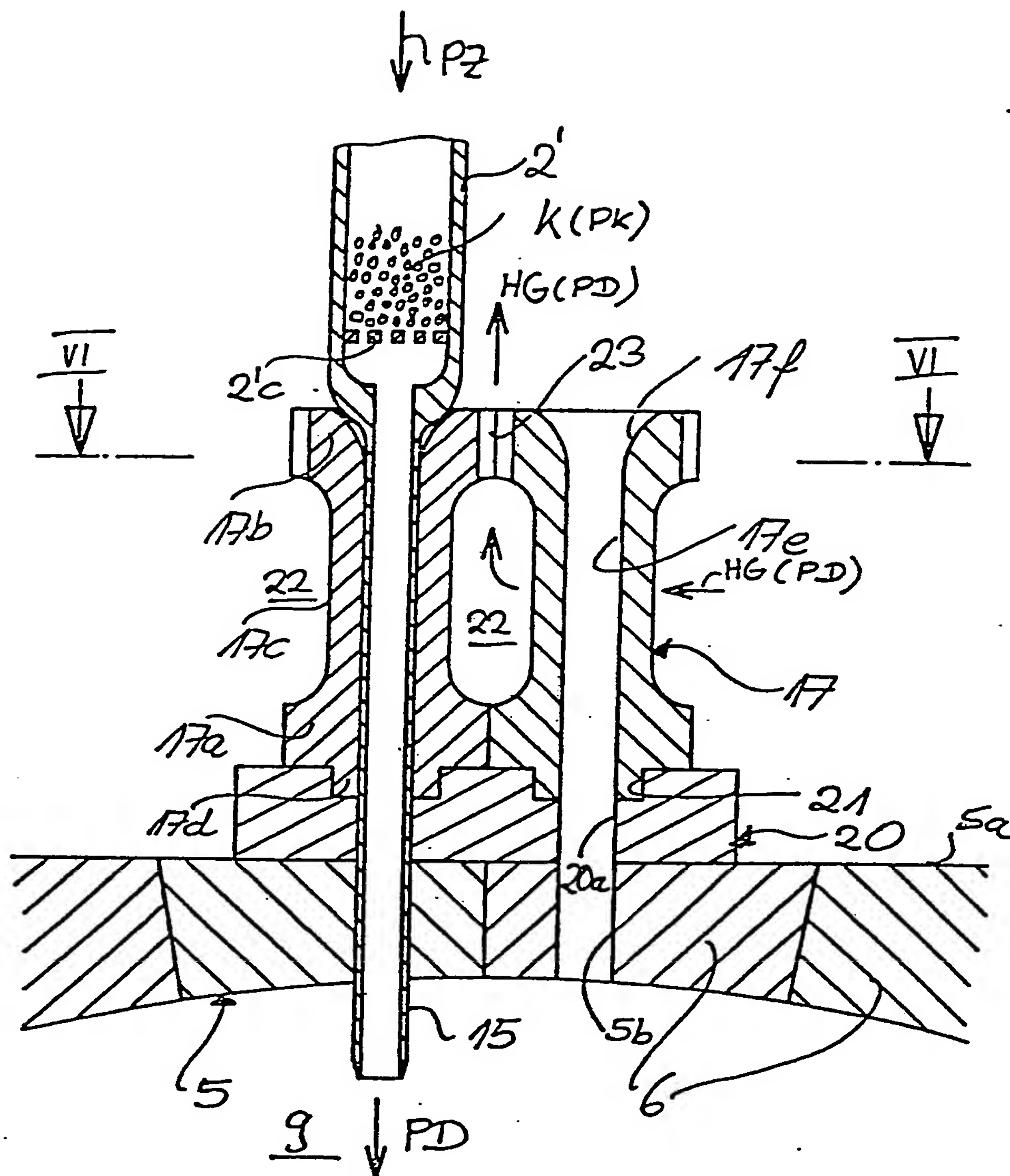


FIG. 7

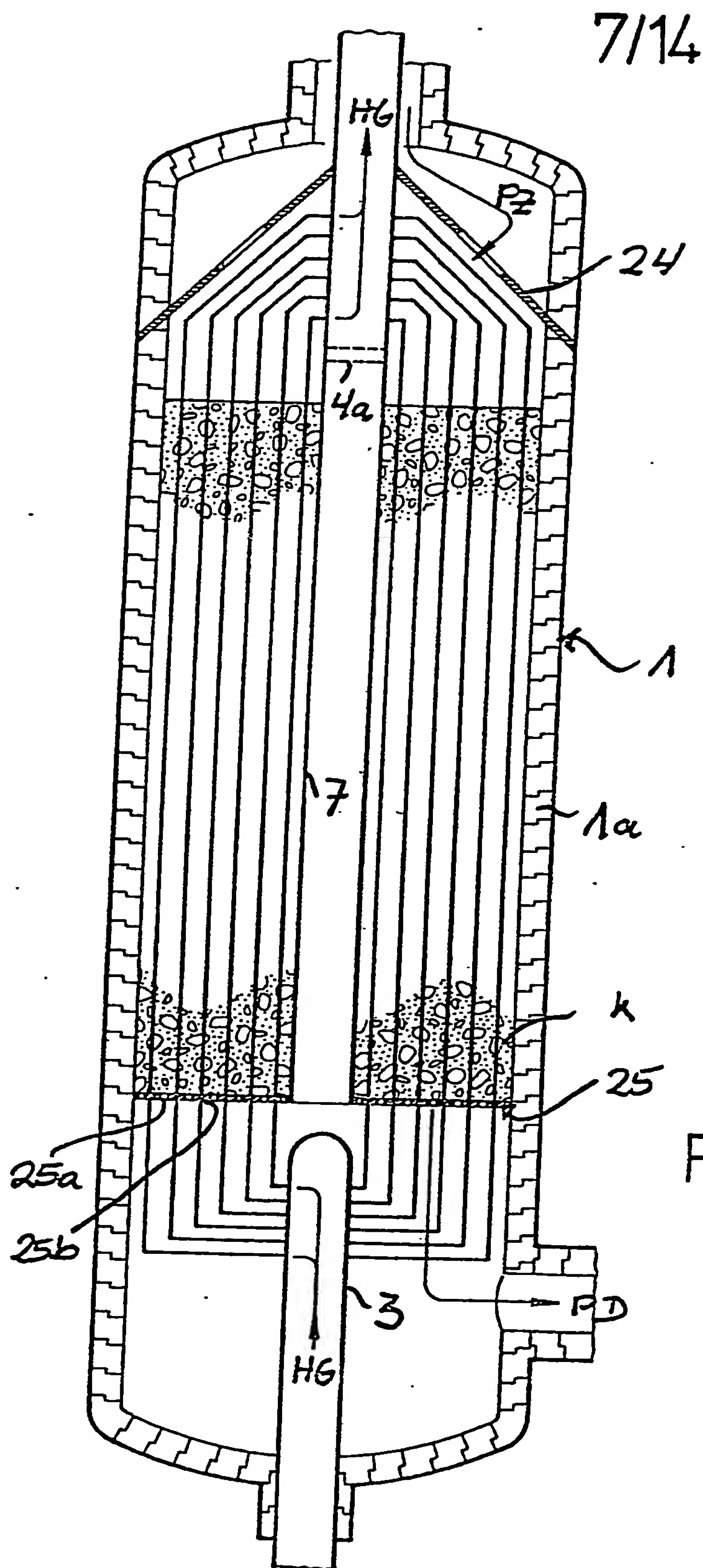


FIG.9

8/14

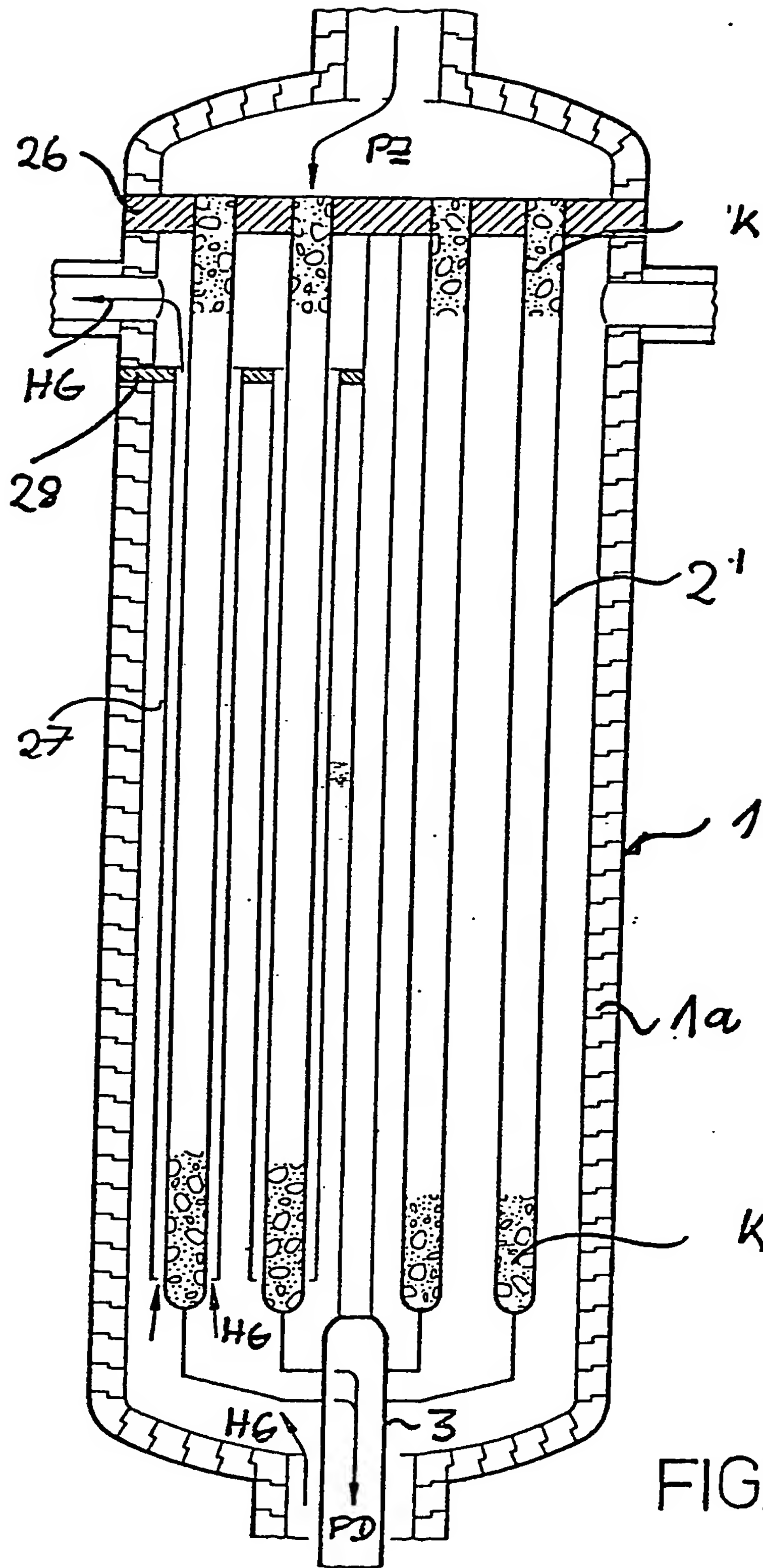


FIG.10

9/14

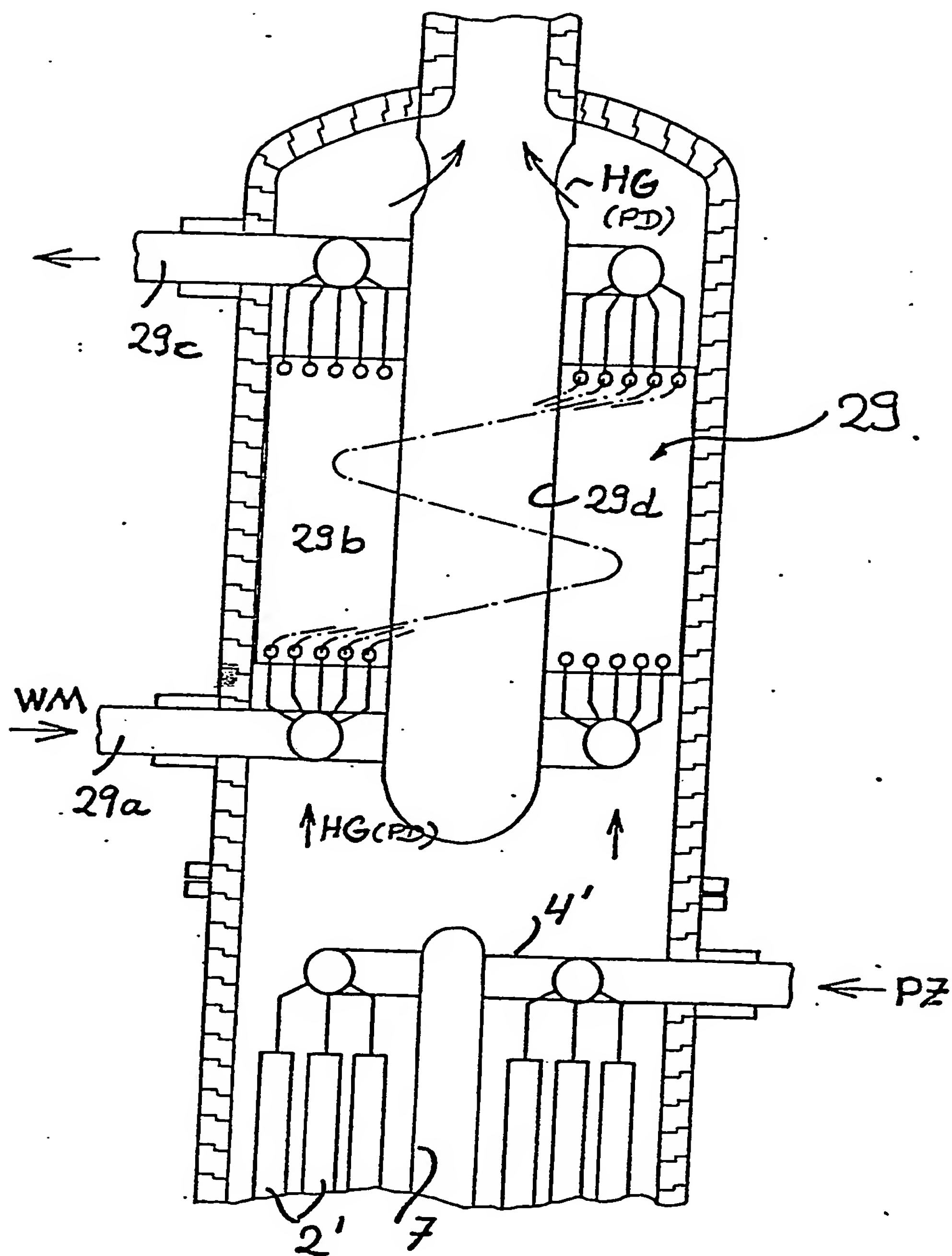
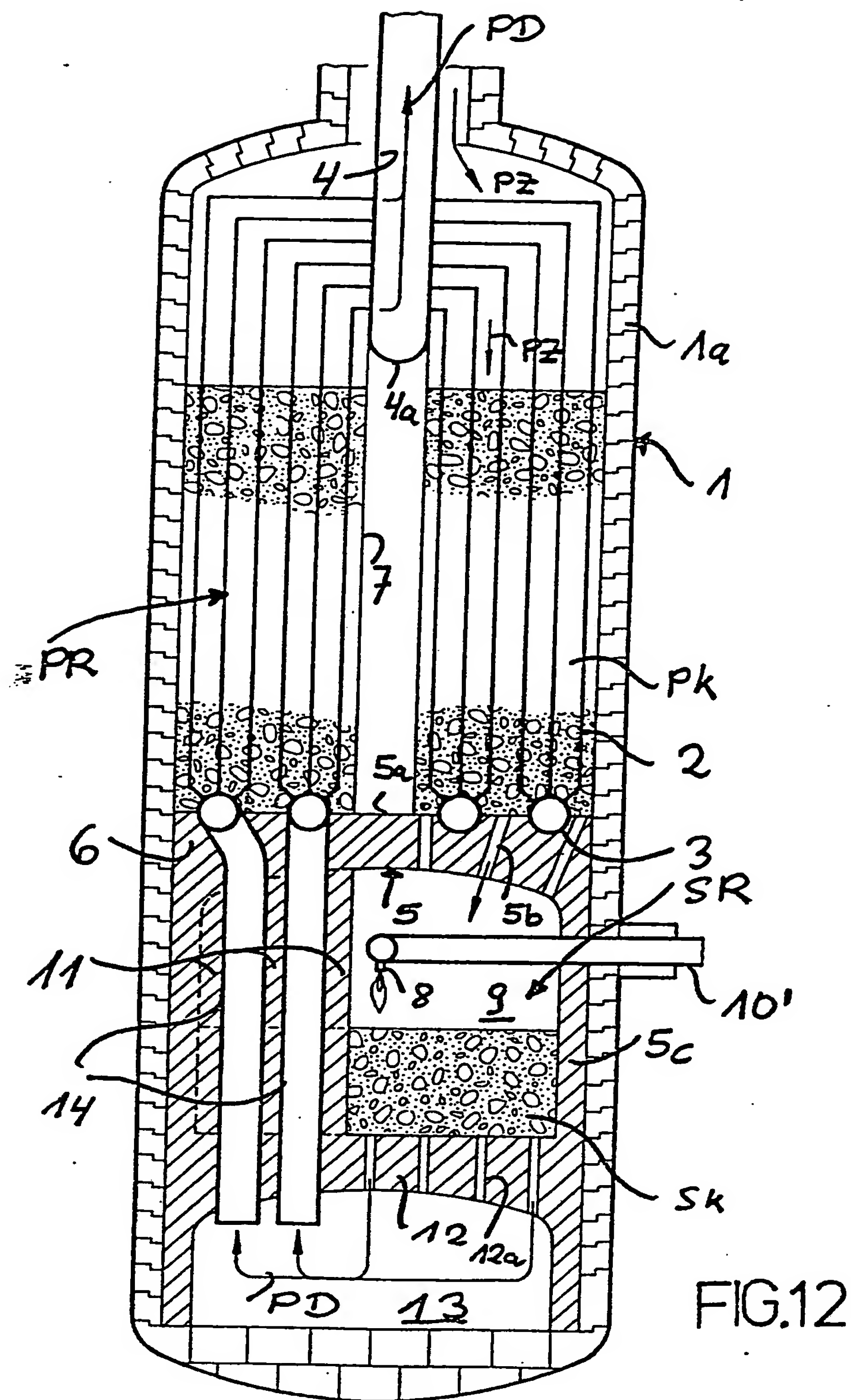
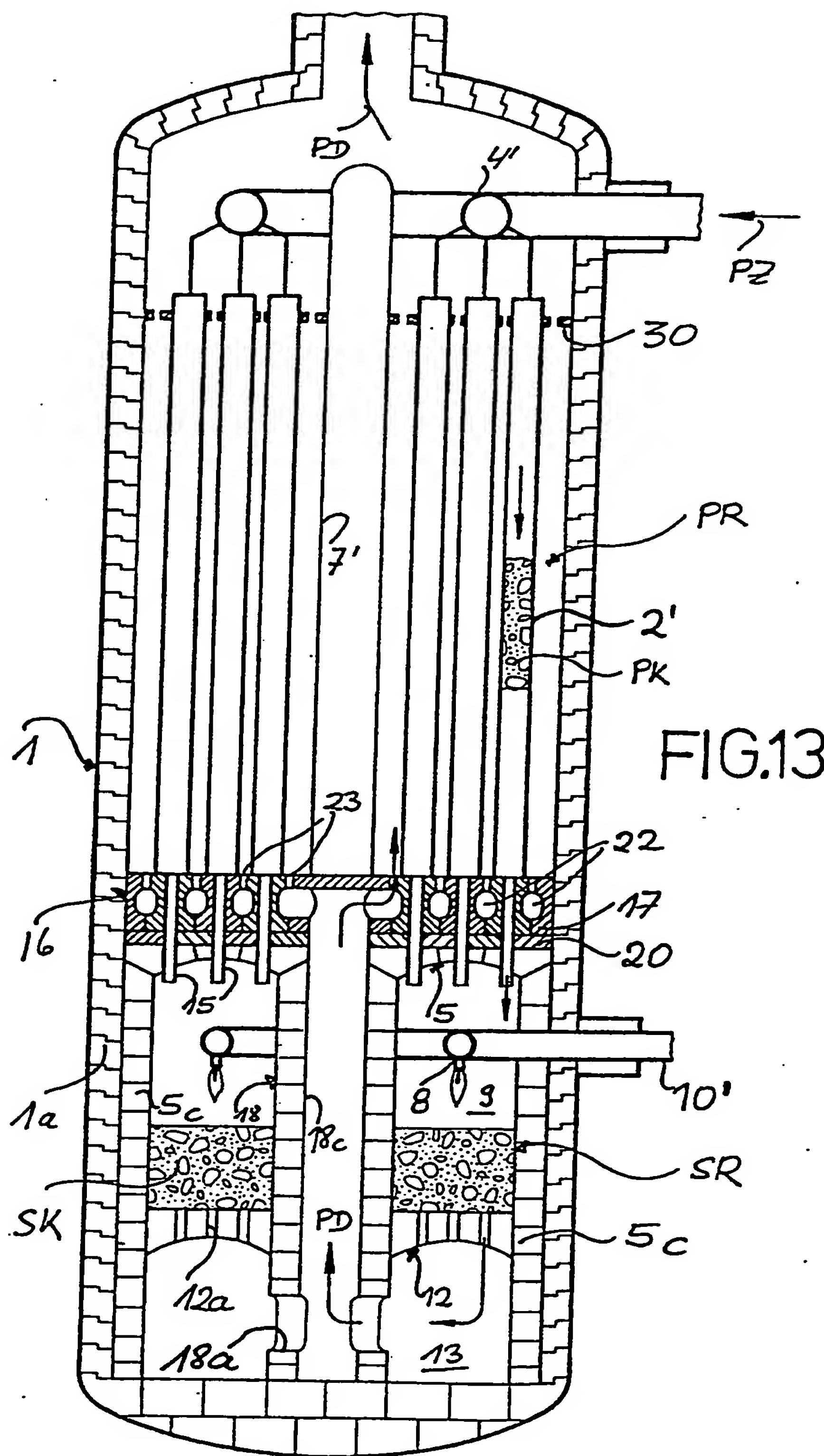


FIG. 11

10/14



11/14



12/14

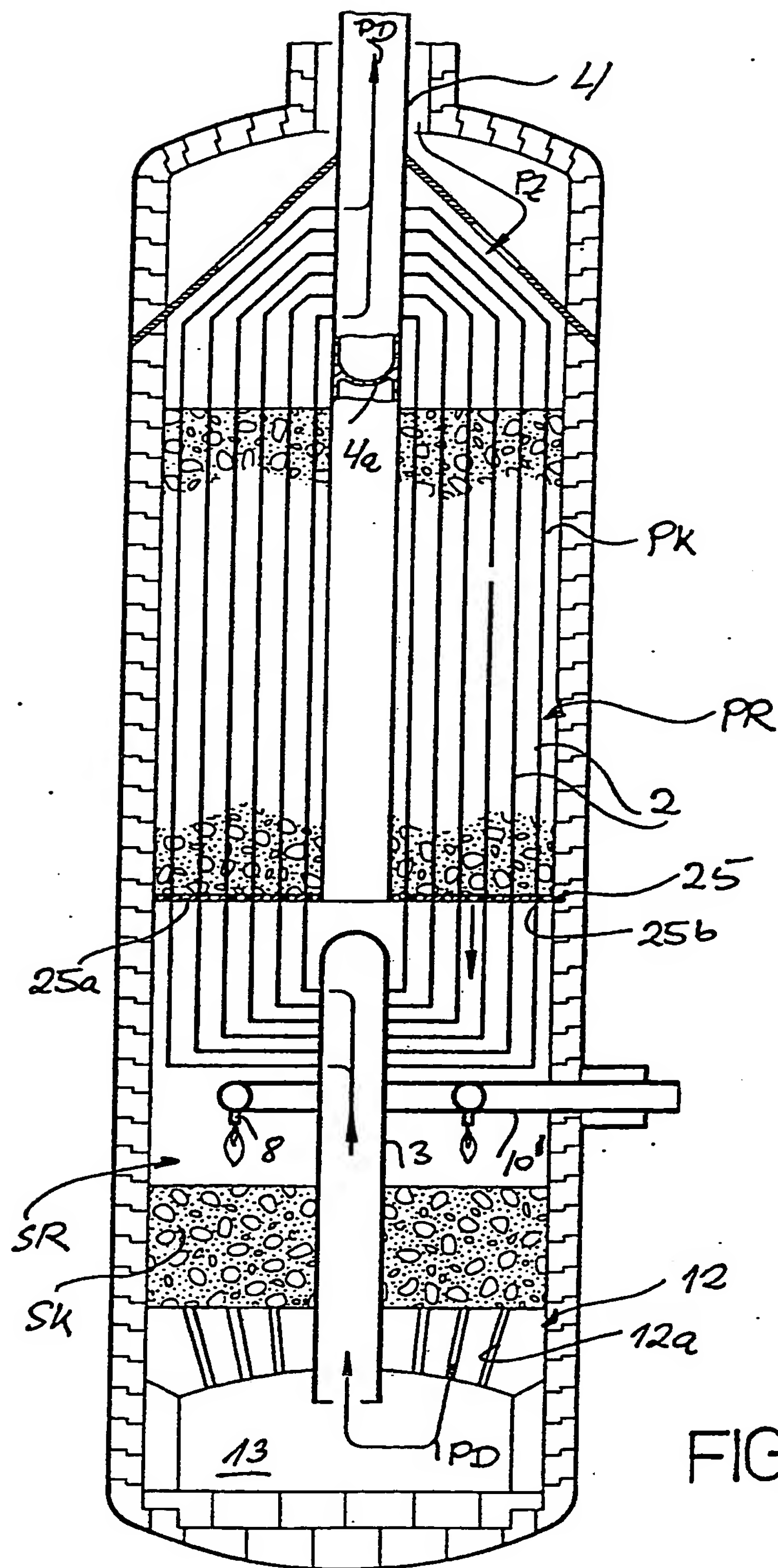


FIG.14

13/14

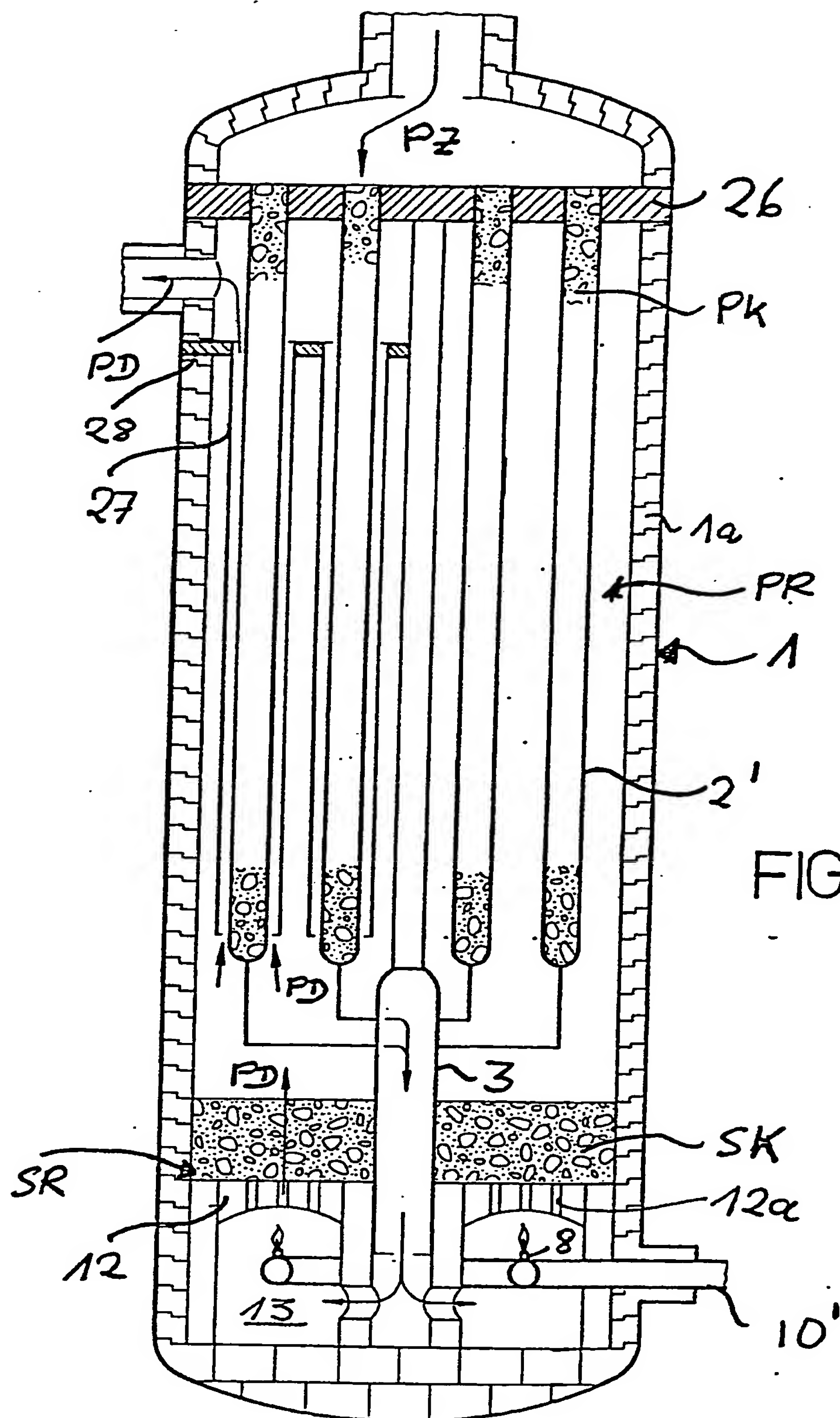
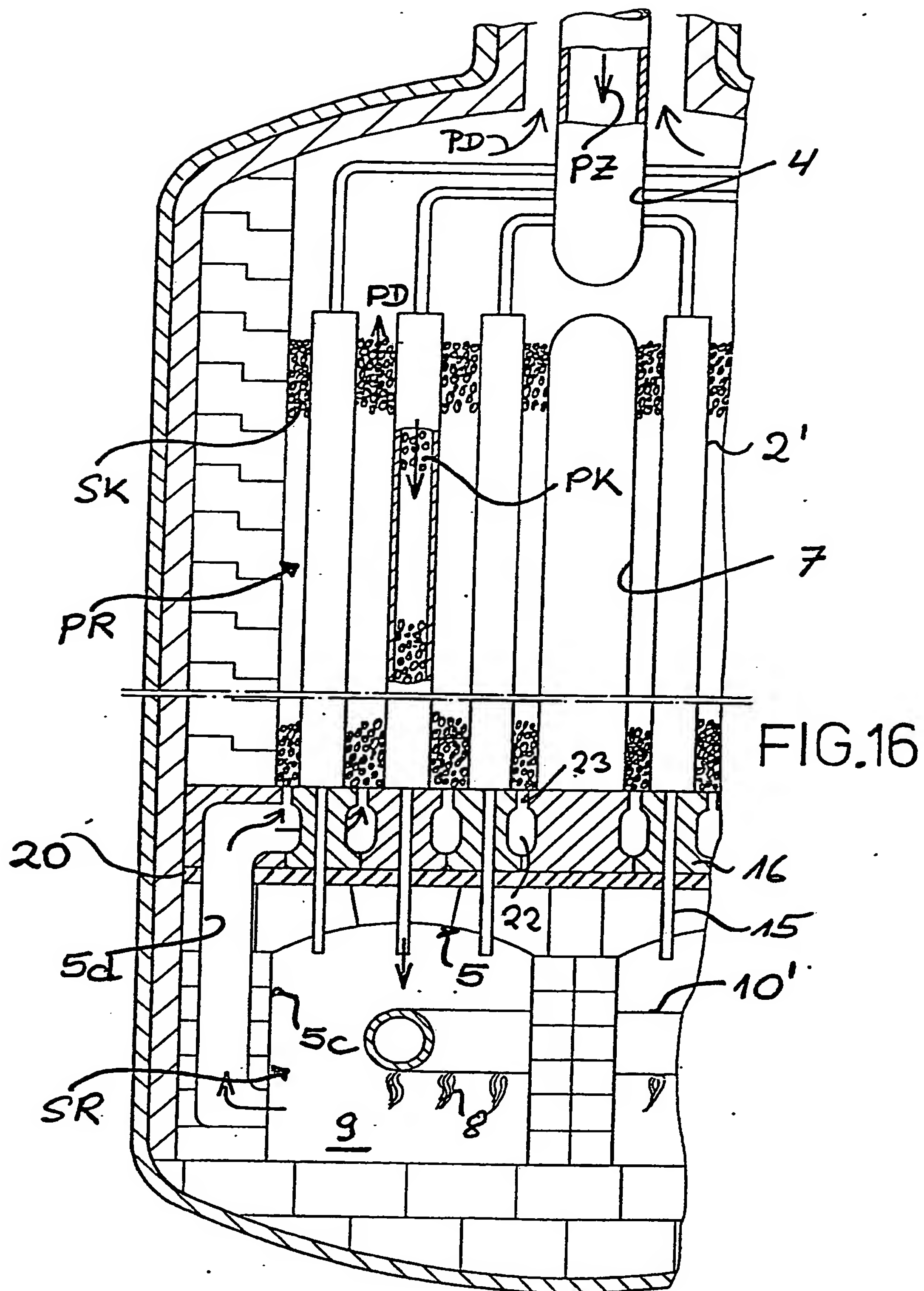


FIG.15

14/14



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)(51) Internationale Patentklassifikation⁴ :

C01B 3/38

A3

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 88/ 01983

(43) Internationales
Veröffentlichungsdatum:

24. März 1988 (24.03.88)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP87/00519

(22) Internationales Anmeldedatum:
14. September 1987 (14.09.87)(31) Prioritätsaktenzeichen: P 36 31 366.1
P 36 31 365.3(32) Prioritätsdaten: 15. September 1986 (15.09.86)
15. September 1986 (15.09.86)

(33) Prioritätsland: DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): L. &
C. STEINMÜLLER GMBH [DE/DE]; Postfach 10 08
55, D-5270 Gummersbach 1 (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US) : PANKNIN, Walter
[DE/DE]; Zeisigpfad 7, D-5270 Gummersbach 1
(DE).(74) Anwalt: CARSTENS, Wilhelm; L. & C. Steinmüller
GmbH, Postfach 10 08 55, D-5270 Gummersbach 1
(DE).(81) Bestimmungsstaaten: AT (europäisches Patent), BE (eu-
ropäisches Patent), CH (europäisches Patent), DE
(europäisches Patent), FR (europäisches Patent), GB
(europäisches Patent), IT (europäisches Patent), JP,
LU (europäisches Patent), NL (europäisches Patent),
NO, SE (europäisches Patent), SU, US.

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

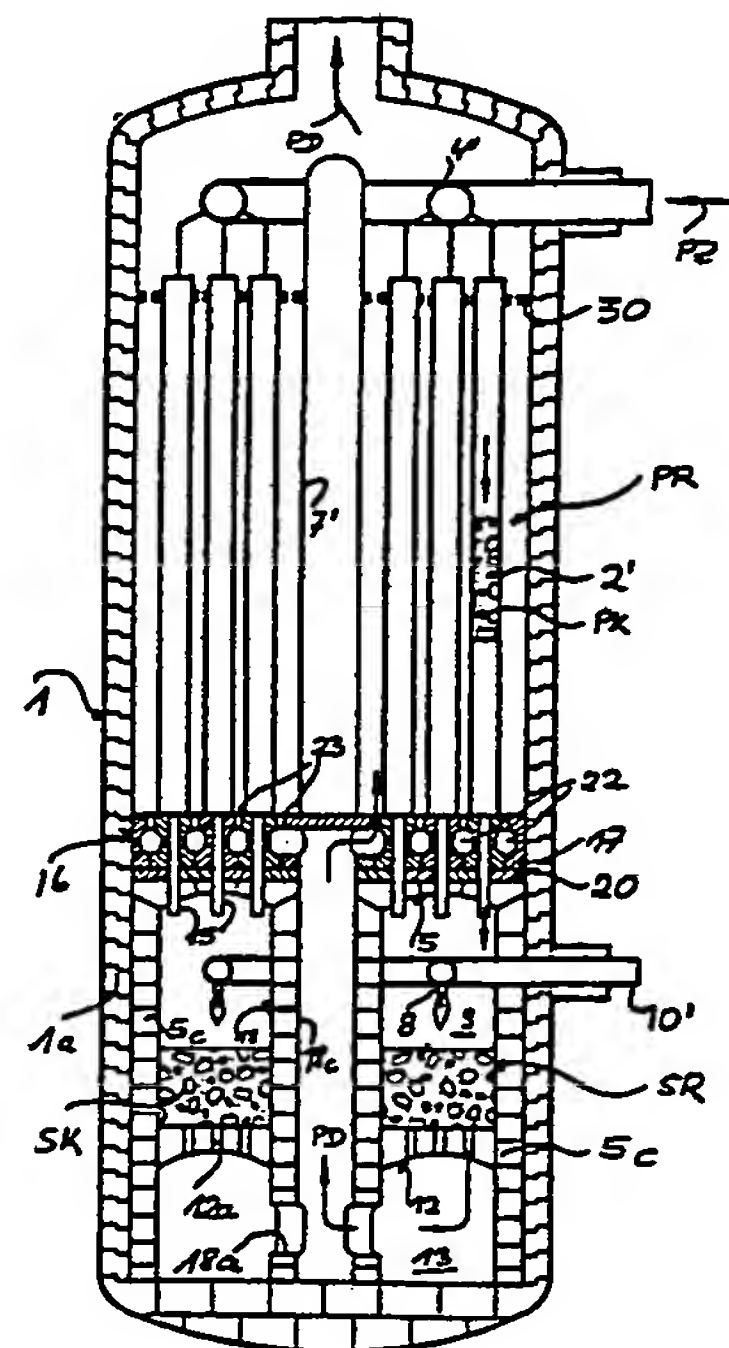
Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassen
Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen
eintreffen.(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenbe-
richts:
14. Juli 1988 (14.07.88)

(54) Title: REFORMER FOR CATALYTIC CRACKING OF GASEOUS HYDROCARBONS

(54) Bezeichnung: REFORMER FÜR DIE KATALYTISCHE SPALTUNG GASFÖRMIGER KOHLENWASSER-
STOFFE

(57) Abstract

A reformer for catalytic cracking of gaseous hydrocarbons, in particular in the presence of water vapour, for obtaining a reconstituted gas, comprises a pressurized tank (1), a plurality of cracking tubes (2) parallel to one another in said tank, and a catalyst (PK). The heat convected through the tube walls and originating from a burning heating gas is transferred to the processing gas passing through the catalyst. In order to facilitate, on the one hand, the replacement of the catalyst, the heating gas (HG) is conveyed through the cracking tubes (2') and the catalyst (PK) is introduced into the pressurized tank (1) between the cracking tubes in the form of a loose material, and, on the other hand, in order to improve the support system for the cracking tubes, the tubes (2') are jointly supported with the catalyst (PK) vertically on a vault (5) made of ceramic material, provided with gas passages (5b) and defining a gas-collection space (9) for the reconstituted gas (PD). During use of the reformer as a primary reformer in a primary and secondary reformer installation, it is envisaged that in order to simplify said installation and improve thermal economy, the primary reformer (PR) and secondary reformer (SR) are arranged in a single pressurized tank (19) and that the reconstituted gas (PD) from the secondary reformer (SR) is fed to the primary reformer for the purpose of convection heating of the latter.



(57) Zusammenfassung Bei einem Reformer für die katalytische Spaltung gasförmiger Kohlenwasserstoffe insb. mit Wasserdampf zu einem Produktgas mit einem Druckbehälter (1), einer Vielzahl von in dem Behälter parallel zueinander angeordneten Spaltrohren (2) und einem Katalysator (PK), wobei durch die Rohrwände hindurch konvektiv Wärme von einem heißen Heizgas auf das den Katalysator durchströmende Prozeßgas übertragbar ist, ist zum einen zur Erleichterung des Katalysatorwechsels vorgesehen, daß das Heizgas (HG) durch die Spaltrohre (2') geführt ist und der Katalysator (PK) in dem Druckbehälter (1) zwischen die Spaltrohre als Schüttung eingebracht ist, und zum anderen zur Verbesserung der Abstützung der Spaltrohre vorgesehen, daß die Rohre (2') stehend auf einem aus einem keramischen Werkstoff aufgebauten und einen Gassammelraum (9) für das Produktgas (PD) begrenzenden und mit Gasdurchlässen (5b) versehenen Deckengewölbe (5) zusammen mit dem Katalysator (PK) abgestützt sind. Bei Verwendung des Reformers als Primärreformer in einer Primär-Sekundärreformer-Anlage ist zur Vereinfachung der Anlage und zur Verbesserung des Wärmehaushalts vorgesehen, daß der Primärreformer (PR) und der Sekundärreformer (SR) in einem einzigen Druckbehälter (19) angeordnet sind und daß das den Sekundärreformer (SR) verlassende Produktgas (PD) dem Primärreformer (PR) zur konvektiven Heizung des Primärreformers zuführbar ist.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Code, die zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AT	Österreich	FR	Frankreich	ML	Mali
AU	Australien	GA	Gabun	MR	Mauritanien
BB	Barbados	GB	Vereinigtes Königreich	MW	Malawi
BE	Belgien	HU	Ungarn	NL	Niederlande
BG	Bulgarien	IT	Italien	NO	Norwegen
BR	Brasilien	JP	Japan	RO	Rumänien
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SD	Sudan
CG	Kongo	KR	Republik Korea	SE	Schweden
CH	Schweiz	LI	Liechtenstein	SN	Senegal
CM	Kamerun	LK	Sri Lanka	SU	Soviet Union
DE	Deutschland, Bundesrepublik	LU	Luxemburg	TD	Tschad
DK	Dänemark	MC	Monaco	TG	Togo
FI	Finnland	MG	Madagaskar	US	Vereinigte Staaten von Amerika

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP87/00519

I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER (If several classification symbols apply, indicate all) *

According to International Patent Classification (IPC) or to both National Classification and IPC

Int.Cl.⁴: C01B 3/38

II. FIELDS SEARCHED

Minimum Documentation Searched ⁷

Classification System

Classification Symbols

IPC⁴

C01B

Documentation Searched other than Minimum Documentation
to the Extent that such Documents are Included in the Fields Searched *

III. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT *

Category *	Citation of Document, ¹¹ with Indication, where appropriate, of the relevant passages ¹²	Relevant to Claim No. ¹³
X	Japanese Patent Report, Sect. Ch, Vol 80, No. 17, 23 May 1980, Derwent Publications Ltd, (London, GB), & JP, B, 80014803 (AGENCY OF IND. SCI. TECHN.), 18 April 1980, see sheet H, page 1, No. J. 80014803 ---	1
A	FR, A, 2374948 (UNITED TECHNOLOGIES), 21 July 1978 ---	
P,X	Patents Abstracts of Japan, Vol 11, No. 267, (C-443) (2714), 28 August 1987, & JP, A, 6265902 (MITSUBISHI HEAVY IND. LTD.), 25 March 1987, see the abstract ---	1
P,X	Patents Abstracts of Japan, Vol. 11, No. 267, (C-443) (2174), 28 August 1987, & JP, A, 6265903 (MITSUBISHI HEAVY IND. LTD.) 25 March 1987, see the abstract	1
A	Chemical Abstracts, Vol. 103, No. 24, December 1985 (Columbus, Ohio, US), see page 144, abstract 198441f,	.../...

* Special categories of cited documents: ¹⁰

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"Z" document member of the same patent family

IV. CERTIFICATION

Date of the Actual Completion of the International Search
16 May 1988 (16.05.88)

Date of Mailing of this International Search Report
10 June 1988 (10.06.88)

International Searching Authority

European Patent Office

Signature of Authorized Officer

III. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT (CONTINUED FROM THE SECOND SHEET)		
Category*	Citation of Document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to Claim No
A	& JP, A, 60103001 (MITSUBISHI HEAVY IND. LTD), 7 June 1985	
	FR, A, 2325424 (FRIEDRICH UHDE), 22 April 1977	

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM THE SECOND SHEET

V. ☐ OBSERVATIONS WHERE CERTAIN CLAIMS WERE FOUND UNSEARCHABLE ¹

This International search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2) (a) for the following reasons:

1. ☐ Claim numbers _____, because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claim numbers _____, because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claim numbers _____, because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of PCT Rule 6.4(a).

VI. ☒ OBSERVATIONS WHERE UNITY OF INVENTION IS LACKING ²

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application as follows:

See form PCT/ISA/206 dated 13 January 1988.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims of the international application.

2. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims of the international application for which fees were paid, specifically claims:

3. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claim numbers:

4. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, the International Searching Authority did not invite payment of any additional fee.

Remark on Protest

☐ The additional search fees were accompanied by applicant's protest.

☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

ANNEX TO THE INTERNATIONAL SEARCH REPORT
ON INTERNATIONAL PATENT APPLICATION NO.

EP 8700519
SA 18554

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report.
The members are as contained in the European Patent Office EDP file on 26/05/88
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
FR-A- 2374948	21-07-78	DE-A- 2751253	29-06-78
		US-A- 4098588	04-07-78
		JP-A- 53079767	14-07-78
		GB-A- 1564993	16-04-80
		CA-A- 1101194	19-05-81
FR-A- 2325424	22-04-77	DE-A- 2542918	31-03-77
		US-A- 4078899	14-03-78
		GB-A- 1550378	15-08-79

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 87/00519

I. KLASSIFIKATION DES ANMELDUNGSGEGENSTANDS (bei mehreren Klassifikationssymbolen sind alle anzugeben) ⁶		
Nach der internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
Int. Cl. 4. C 01 B 3/38		
II. RECHERCHIERTE SACHGEBIETE		
Recherchierter Mindestprüfstoff ⁷		
Klassifikationssystem	Klassifikationssymbole	
Int. Cl. 4	C 01 B	
Recherchierte nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Sachgebiete fallen ⁸		
III. EINSCHLÄGIGE VERÖFFENTLICHUNGEN⁹		
Art*	Kennzeichnung der Veröffentlichung ¹¹ , soweit erforderlich unter Angabe der maßgeblichen Teile ¹²	Betr. Anspruch Nr. ¹³
X	Japanese Patent Report, Section Ch, Band 80, Nr. 17, 23. Mai 1980, Derwent Publications Ltd, (London, GB), & JP, B, 80014803 (AGENCY OF IND. SCI. TECHN.) 18. April 1980 siehe Blatt H, Seite 1, Nr. J 80014803 --	1
A	FR, A, 2374948 (UNITED TECHNOLOGIES) 21. Juli 1978 --	
P, X	Patent Abstracts of Japan, Band 11, Nr. 267 (C-443)(2714), 28. August 1987, & JP, A, 6265902 (MITSUBISHI HEAVY IND. LTD) 25. März 1987 siehe Zusammenfassung --	1
P, X	Patent Abstracts of Japan, Band 11, Nr. 267 (C-443)(2714), 28. August 1987, & JP, A, 6265903 (MITSUBISHI HEAVY IND. LTD) 25. März 1987 ./.	1
<div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <div style="width: 48%;"> <p>* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen¹⁰:</p> <p>"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist</p> <p>"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</p> <p>"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)</p> <p>"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht</p> <p>"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist</p> </div> <div style="width: 48%;"> <p>"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist</p> <p>"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden</p> <p>"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist</p> <p>"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</p> </div> </div>		
IV. BESCHEINIGUNG		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
16. Mai 1988		10 JUN 1988
Internationale Recherchenbehörde		Unterschrift des bevollmächtigten Bediensteten
Europäisches Patentamt		 P.C.G. VAN DER PUTTEN

III. EINSCHLÄGIGE VERÖFFENTLICHUNGEN (Fortsetzung von Blatt 2)		
Art *	Kennzeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der maßgeblichen Teile	Betr. Anspruch Nr.
	siehe Zusammenfassung	
A	Chemical Abstracts, Band 103, Nr. 24, Dezember 1985, (Columbus, Ohio, US), siehe Seite 144, Zusammenfassung 198441f, & JP, A, 60103001 (MITSUBISHI HEAVY IND. LTD) 7. Juni 1985	
A	FR, A, 2325424 (FRIEDRICH UHDE) 22. April 1977	

WEITERE ANGABEN ZU BLATT 2

V. BEMERKUNGEN ZU DEN ANSPRÜCHEN, DIE SICH ALS NICHT RECHERCHIERBAR ERWIESEN HABEN¹

Gemäß Artikel 17 Absatz 2 Buchstabe a sind bestimmte Ansprüche aus folgenden Gründen nicht Gegenstand der internationalen Recherche gewesen:

1. ☐ Ansprüche Nr., weil sie sich auf Gegenstände beziehen, die zu recherchieren die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich

2. ☐ Ansprüche Nr., weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich

3. ☐ Ansprüche Nr., weil sie abhängige Ansprüche und nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) PCT abgefaßt sind.

VI. ☒ BEMERKUNGEN BEI MANGELNDER EINHEITLICHKEIT DER ERFINDUNG²

Die Internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

Siehe Formblatt PCT/ISA/206 vom 13. Januar 1988.

1. ☒ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich der internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche der internationalen Anmeldung.
2. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich der internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche der internationalen Anmeldung, für die Gebühren gezahlt worden sind, nämlich
3. ☐ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; sie ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:
4. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche eine Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Internationale Recherchenbehörde eine solche Gebühr nicht verlangt.

Bemerkung hinsichtlich eines Widerspruchs

- ☒ Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.
- ☐ Die Zahlung zusätzlicher Gebühren erfolgte ohne Widerspruch.

ANHANG ZUM INTERNATIONALEN RECHERCHENBERICHT ÜBER DIE INTERNATIONALE PATENTANMELDUNG NR.

EP 8700519
SA 18554

In diesem Anhang sind die Mitglieder der Patentfamilien der im obengenannten internationalen Recherchenbericht angeführten Patentedokumente angegeben.
Die Angaben über die Familienmitglieder entsprechen dem Stand der Datei des Europäischen Patentamts am 26/05/88.
Diese Angaben dienen nur zur Unterrichtung und erfolgen ohne Gewähr.

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
FR-A- 2374948	21-07-78	DE-A- 2751253	29-06-78
		US-A- 4098588	04-07-78
		JP-A- 53079767	14-07-78
		GB-A- 1564993	16-04-80
		CA-A- 1101194	19-05-81

FR-A- 2325424	22-04-77	DE-A- 2542918	31-03-77
		US-A- 4078899	14-03-78
		GB-A- 1550378	15-08-79

THIS PAGE BLANK (USPTO)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)